

Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire
UMR 5579 CNRS
Université Claude Bernard-Lyon 1

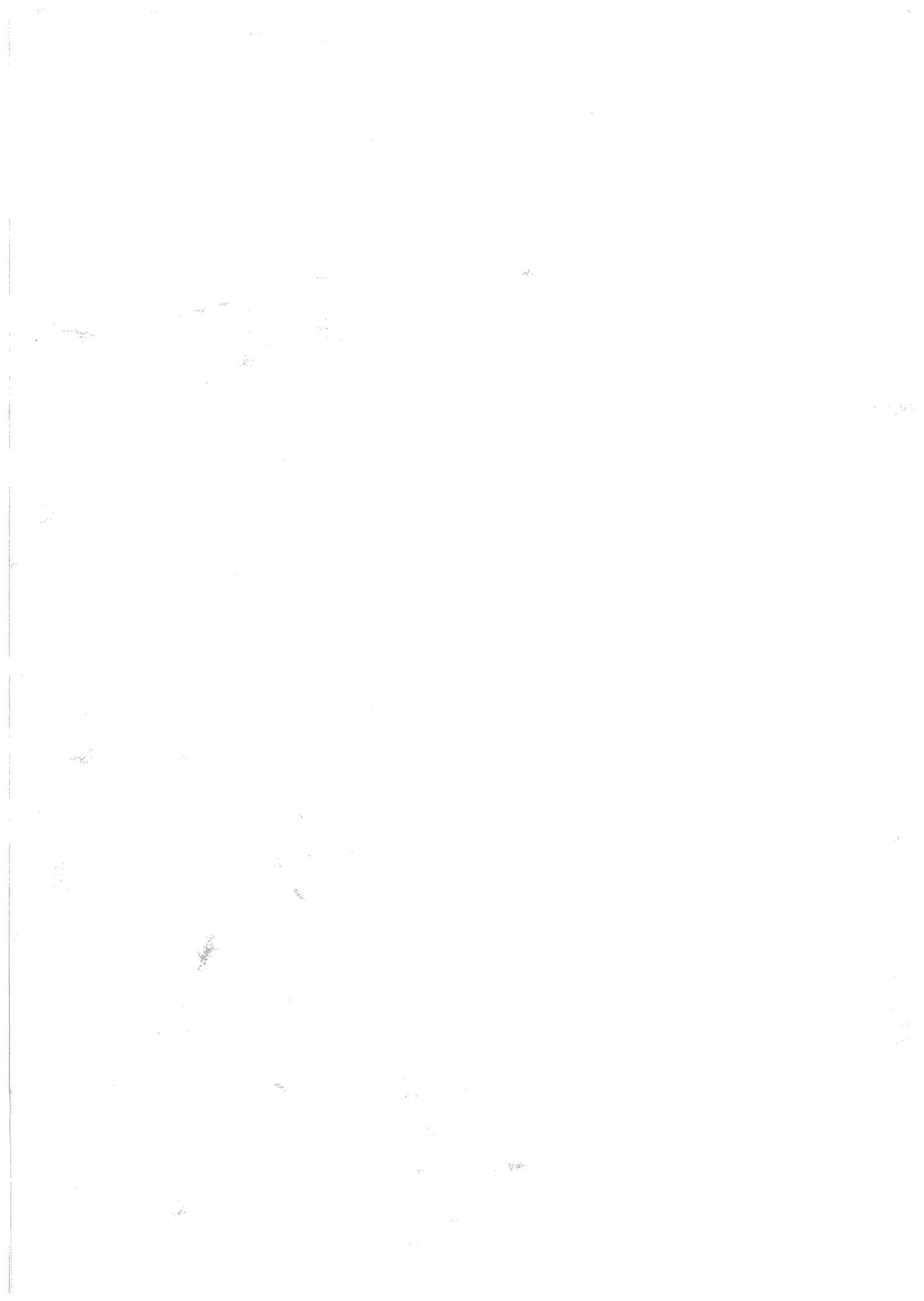
Habilitation à Diriger des Recherches

Présentée par

Jin Yu

Soutenue le 6 décembre 2000 devant le Jury composé de :

MM	B. BOULON	Rapporteur
	M. BROYER	Président
	J. DALIBARD	
	P. GEORGES	
	A. MYSYROWICZ	Rapporteur
	P. PILLET	Rapporteur
	F. SALIN	
	J.P. WOLF	
	L. WÖSTE	



Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire
UMR 5579 CNRS
Université Claude Bernard-Lyon 1

Habilitation à Diriger des Recherches

Présentée par

Jin Yu

Soutenue le 6 décembre 2000 devant le Jury composé de :

MM	B. BOULON	Rapporteur
	M. BROYER	Président
	J. DALIBARD	
	P. GEORGES	
	A. MYSYROWICZ	Rapporteur
	P. PILLET	Rapporteur
	F. SALIN	
	J.P. WOLF	
	L. WÖSTE	

Avant propos

Au terme d'une période de rédaction qui a duré non loin de six mois pendant laquelle j'ai passé régulièrement mes soirées et mes week-ends devant l'écran de l'ordinateur, et avant que ce manuscrit ne soit envoyé aux rapporteurs et aux autres membres du jury, j'essaie de clarifier les propos d'un tel document. Cette clarification me sert à me reconforter dans mes efforts, mais surtout elle rend, j'espère, ce document plus logique et plus raisonnable pour ses lecteurs, contraints ou volontaires, curieux ou intéressés.

C'est un résumé et une revue de mes activités de recherche pendant une période de onze années après la soutenance de ma thèse de Doctorat. Onze années c'est une assez longue période dans la carrière d'un chercheur pendant laquelle on a le temps de mûrir. C'est aussi pour moi une période dans laquelle j'ai effectué un changement important de thématique de recherche accompagné d'un changement de laboratoire.

Il est clair que mes activités du début de ma carrière concernant le refroidissement d'atomes par laser sont revues avec un œil nostalgique. Bien que les résultats et les interprétations exposés puissent paraître, aujourd'hui, «quasi-historiques» je les ai «retrouvés» avec des fois encore beaucoup d'excitations, car ils témoignent les efforts que nous avons fournis à l'époque pour contribuer à l'avancement dans ce domaine de recherche qui commençait à prendre un essor considérable.

Mes activités consacrées aux développements de lasers, des diodes laser ultra-stables aux lasers solides à impulsions ultra-courtes, reflètent l'évolution spectaculaire de la technologie pendant cette dernière décennie. A travers mes efforts, je tiens à donner un témoignage, certainement modeste, de cette évolution.

C'est aussi ce passage de l'ultra-stable à l'ultra-courte qui m'a permis de m'investir dans mon domaine de recherche actuel : L'optique nonlinéaire et la détection de la pollution atmosphérique avec des impulsions ultra-courtes et ultra-intenses. J'ai pu notamment contribuer au projet Teramobile. Les résultats récents sont exposés dans ce document. Les travaux sont à poursuivre.

Les résultats exposés dans ce document sont les fruits des efforts de toute une équipe. Il est dérisoire, aujourd'hui, de prétendre de faire de la physique expérimentale seul dans son coin. La richesse d'une collectivité est la source de la créativité scientifique et aussi de la consolation des frustrations devant les échecs, qui sont le quotidien d'un chercheur. Les collaborations entre les équipes sont aussi vitales pour une recherche de qualité.

Le moment est venu d'exprimer mes remerciements. Ils vont d'abord aux membres du Jury.

Que Monsieur le Professeur Ludger WÖSTE soit remercié pour avoir accepté de participer au jury, et pour des moments agréables passés ensemble avec le projet Teramobile. C'est en effet un grand honneur pour moi de travailler à côté de celui qui, un jour, a imaginé un lidar nonlinéaire avec des impulsions femtosecondes.

Je remercie vivement Monsieur André MYSYROWICZ, Directeur de recherche, pour sa gentillesse d'accepter de rapporter sur mes travaux, et pour ses expertises sur la filamentation dans l'air induite par des impulsions ultra-intenses. Ces expertises sont précieuses pour mener à bien notre projet Teramobile.

Je tiens à remercier chaleureusement Monsieur Jean DALIBARD, Directeur de recherche, pour avoir consacré son temps à s'intéresser à mes travaux. Qu'il trouve aussi ici l'expression de mon souvenir reconnaissant de ses enseignements que j'ai reçus au DEA.

Que Monsieur François SALIN, Directeur de recherche, soit remercié pour sa gentillesse de participer au jury. C'est pour moi un grand honneur de présenter nos résultats obtenus avec

des impulsions femtosecondes amplifiées devant le co-inventeur de l'amplificateur à dérivée de fréquence.

Mes remerciements chaleureux vont aussi à Monsieur Patrick GEORGES, Directeur de recherche, pour sa gentillesse de participer au jury et pour les aides généreuses qu'il nous a apportées lors de notre développement du laser Cr:LiSAF pompé par diodes.

Je remercie chaleureusement Monsieur Pierre PILLET, Directeur de recherche, pour l'effort et l'intérêt qu'il a apportés sur mes travaux en rapportant mon manuscrit. Je garde un merveilleux souvenir de la période où je travaillais avec lui au Laboratoire Aimé Cotton. Son sens de rigueur et ses conseils clairvoyants me laissent une profonde influence. Qu'il trouve ici l'expression de mon sentiment amical.

Que Monsieur le Professeur Georges BOULON trouve ici l'expression de mes remerciements chaleureux pour sa disponibilité à rapporter sur mes travaux, et pour les collaborations fructueuses que nous avons réalisées avec la fibre de niobate de lithium.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur le Professeur Michel BROYER, Directeur du Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire, dans lequel j'ai pu trouver un terrain propice à une recherche de qualité. Je le remercie aussi pour sa participation au jury.

J'aimerais profiter de cette occasion pour exprimer ma profonde gratitude à Monsieur le Professeur Jean-Pierre WOLF, ou plutôt le «chef» Jean-Pierre pour les collègues de son équipe, pour le soutien et la confiance qu'il m'a accordés durant ces dernières années dans ma carrière d'Enseignant-Chercheur. Travailler avec lui est de partir dans une formidable aventure où les efforts sont récompensés par des réussites. Que la qualité de notre amitié soit à la hauteur des épreuves qu'elle a subies.

Je voudrais aussi remercier beaucoup d'autres personnes.

Ce sont des personnages qui m'ont, à un certain moment, donné une chance, fait confiance ou transmis du savoir-faire de leur domaine de compétence. Je pense à Madame Catherine BRECHIGNAC, à Monsieur Jean-Louis PICQUE, et à Monsieur André CLAIRON.

Ce sont les collègues des deux laboratoires, le Laboratoire Aimé Cotton à Orsay et le Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire à Lyon. A défaut d'être complet, je voudrais simplement souligner l'ambiance dynamique et sympathique de «l'équipe Wolf» où les jeunes, permanents, doctorants ou stagiaires animent les activités du groupe avec un esprit collectif, et de l'imagination. Je pense à Véronique, Jérôme, Didier, Alexandre, Catherine, Brigitte, Mathilde, Emeric, Patrick, M'Hamed, Olivier, Karen, Frédéric, Stéphane, Guillaume, Romain... Avec eux je suis obligé de rester «jeune».

Je pense aussi aux autres collègues du LASIM qui m'ont accueilli avec leur gentillesse, leurs conseils et leurs encouragements. La liste serait longue si j'essayais d'être complet, je voudrais exprimer tout particulièrement mes remerciements à Amanda et à Patrick, qui sont toujours prêts à m'aider. Cette expression de générosité me fait chaud au cœur.

Je pense tout particulièrement à mes collègues des staffs technique et administratif dont je dois des soutiens infaillibles et des aides d'une qualité irréprochable. Je dis Merci et Bravo à Marc et Marc, Thierry, Michel, Bernard, Jacques... Je remercie Madame DI LITTA qui est toujours compréhensive pour mes démarches administratives qui sont de fois compliquées.

J'aimerais remercier mes copains teramobilistes pour des nuits de manip passées ensemble que ce soit à Jena, à Palaiseau ou à Lyon. Je pense à Stefan, Hollger, Miguel, Stelios, Bernard, Michel, Didier et Jérôme. C'est une expérience enrichissante de travailler avec des collègues venus des horizons différents.

Mes pensées vont aussi à mes professeurs à l'Université de Pékin où j'étais diplômé il y a 18 ans. J'aimerais employer un proverbe chinois qui, parlant d'un arbre, dit «seule la profondeur des racines permet l'exubérance du feuillage». Qu'ils trouvent ici l'expression de mes sentiments de profonde reconnaissance.

Enfin je remercie ma famille : ma femme Li CHEN pour m'avoir toujours soutenu et encouragé dans ma carrière et plus particulièrement dans la rédaction de ce document ; les enfants pour les sacrifices qui leur ont été infligés par un père trop souvent attaché à l'ordinateur ou absent pour des expériences de nuit. Je voudrais dire que cette compréhension et ce soutien sont les plus chers et les plus importants dont j'ai besoins.

Curriculum Vitae

Nom : **Yu**, Prénom : **Jin**

Né le 20 juin 1960 à Hangzhou Zhejiang Chine, Nationalité française

1978 – 1982 Etudiant en Physique, Université de Pékin

1982 – 1983 Etudiant en français, Institut des langues de Pékin

1983 – 1984 Maîtrise de Physique, Université Paris 6

1984 – 1985 DEA de Physique Atomique et Moléculaire

Ecole Normale Supérieure de Paris

1985 – 1988 Thèse de Doctorat

Université Paris-Sud, Laboratoire de l'Horloge Atomique

Directeur de Thèse : Michel Desaintfuscien

Sujet : Etudes du confinement et du refroidissement laser d'ions Mg^+

dans les trappes de Penning et de Paul

1988 – 1994 Séjours post doctoral au Laboratoire Aimé Cotton

multi-financement : poste rouge CNRS, contrat BNM, ingénieur au CNRS

Responsable : Jean-Louis Picqué (du septembre 1988 au janvier 1991)

Pierre Pillet (du janvier 1991 au septembre 1994)

Thème de recherche : Refroidissement d'atomes par laser

Depuis septembre 1994 Maître de Conférences, 1^e classe depuis septembre 1999

Université Claude Bernard-Lyon 1

Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire

Responsable : Jean-Pierre Wolf

Thème de recherche : Spectroscopie laser appliquée à la détection

de la pollution atmosphérique

Résumé de mes activités d'enseignement

1. Cours magistral

Optique Quantique

DEA Particules, Noyaux, Atomes et Photons, Université Claude Berenard-Lyon 1, 99-00
Volume d'horaire : 24 H.

Présentation du cours :

Pendant l'année 1999-2000, j'ai assuré l'intérim du Professeur Jean-Pierre Wolf en séjour aux Etats-Unis pour son cours d'Optique Quantique au DEA.

Les bases de l'Optique Quantique appelée aussi la Théorie Quantique de la Lumière par certains auteurs, sont exposées dans ce cours.

Dans l'introduction on présente une brève historique de la notion du photon, et quelques processus optiques où la propriété quantique de la lumière est manifeste. Le chapitre I est consacré à l'oscillateur harmonique dans la Mécanique Quantique, on y rappelle des notions telles que : opérateur d'annihilation et de création ; état de nombre et états cohérents.

Dans le chapitre II, le champ électromagnétique est quantifié en identifiant les modes du champ E.M. à des oscillateurs harmoniques. On y s'intéresse en suite les fluctuations quantiques du champ E.M., et on étudie notamment l'état de Fock, l'état cohérent, l'état comprimé et finalement le mélange statistique des états purs.

Le chapitre III est consacré à la théorie quantique des interactions atome-champ. Après la deuxième quantification, les probabilités d'absorption et d'émission sont obtenues et comparées à celle obtenues dans la théorie semi-classique. On généralise en suite le formalisme aux processus multi-photoniques.

Le chapitre IV discute plus spécifiquement les effets photoniques et la notion de la cohérence à l'aide de quelques expériences classiques de l'Optique Quantique.

Dans le chapitre V, on expose les bases de l'Optique nonlinéaire bien que celle-ci constitue en elle-même une branche entière de l'Optique Moderne. Après une étude générale de la polarisabilité du milieu de propagation, on étudie les processus nonlinéaires tels que : génération de la seconde harmonique (SHG), oscillation paramétrique optique (OPO, OPA), et conjugaison de phase.

2. Cours intégré

Optique géométrique et compléments Mathématiques

DEUG première année, 95-98
Volume d'horaire : 54 H.

Présentation des cours et des TD :

Bases de l'Optique Géométrique, réflexion, réfraction,

Instrument optique : miroir, lentille, l'œil, lunette, microscope, télescope, appareil de photo.

Rappel Mathématiques : calcul vectoriel, complexes, matrices, intégrales, équations différentielles.

3. TD

- **Semi-conducteur et Electronique** : Licence de Physique
Physique de la jonction, diode, transistor, et circuits.

- **Optique ondulatoire** : Deug niveau 2, filière 2 (Chimie des matériaux)
Notion de l'onde, interférence (fentes d'Young, Fabry-Perot, coin d'air, Michelson), diffraction.
- **Semi-conducteur et Electronique** : Deug niveau 2, filière 2 (Chimie des matériaux)
Semi-conducteurs intrinsèques et dopés, caractéristique de la diode et du transistor, circuits à diode.
- **Electronique** : Deug niveau 2, filière 3 et filière 6
Physique de la jonction, circuit à diode et à transistor, modulation et démodulation d'amplitude et de fréquence.

4. TP

- **Electronique** : Licence de Physique
- **Optique ondulatoire** : Deug niveau 2, filière 2 (Chimie matériau)
- **Electronique** : Deug niveau 2, filière 2 (Chimie matériau)
- **Electronique** : Deug niveau 2, filière 3 (Physique) et filière 6 (Technique)

Résumé de mes activités d'encadrement

Au Laboratoire Aimé Cotton en tant que post-doc travaillant sur une expérience qui nécessite un appareil à jet atomique, des diodes lasers stabilisées et des électroniques de contrôle et d'acquisition, j'ai participé aux encadrements des étudiants en thèse. Les noms de ces étudiants et leur directeur de thèse ainsi que leur sujet sont donnés par la liste suivante :

- **Saïda Guellati**
Directeur de thèse : Jean-Louis Picqué et Pierre Pillet
Sujet : Atomes refroidis par laser : spectroscopie de haute résolution en jet et en fontaine atomique sur la transition de l'horloge à césium. (1989-1992)
- **Constance Valentin**
Directeur de thèse : Pierre Pillet
Sujet : Manipulation non-cohérent et cohérent d'un jet atomique de césium par laser. (1991-1994)
- **Jouda DJEMAA**
Directeur de thèse : Pierre Pillet
Sujet : Etude expérimentale et théorique de la compression transverse par piège magnéto-optique d'un jet atomique de césium ralenti et refroidi par laser. (1992-1995)
- **Patrick Nosbaum**
Directeur de thèse : Pierre Pillet
Sujet : Etude expérimentale et théorique des collisions entre des atomes de césium refroidis par laser. (1992-1995)

Au Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire en tant que Maître de Conférences, j'ai participé aux encadrements des étudiants en stage ou en thèse. Je résume ces activités d'encadrement par la liste ci-dessous :

- **Emeric Fréjafon, co-encadrement**
Directeur de stage : Jean-Pierre Wolf
Stage de DEA Constituants Elémentaires, Lyon 1 – ENS Lyon, 94 - 95
Sujet: Développement d'un laser solide pompé par diode laser et modélisation du régime femtoseconde.
- **M'Hamed Khaif, co-encadrement**
Directeur de stage : Jean-Pierre Wolf
Stage de la première année du Magistère Science de la Matière, Lyon 1 – ENS Lyon, 95 - 96
Sujet: Laser Cr:LiSAF pompé par diode laser, optimisation du régime continu et réglage du régime femtoseconde.
- **Olivier Bonneton, co-encadrement**
Directeur de stage : Jean-Pierre Wolf
Stage du DEA Physique des Solides, Lyon 1 – ENS Lyon, 96 - 97
Sujet: Diffusion linéaire d'impulsions femtosecondes par une microcavité diélectrique.

- **Karen Giulietti**, co-encadrement
 Directeur de stage : Jean-Pierre Wolf
 Stage du DEA Particules, Noyaux, Atomes et Photons, Lyon 1 – ENS Lyon, 97 - 98
 Sujet: Diffusion nonlinéaire d'impulsions femtoseconde par une microcavité diélectrique, génération de la seconde harmonie dans un micro-cylindre de LiNbO_3 .

- **Frédéric Sourgen**, co-encadrement
 Directeur de stage : Jean-Pierre Wolf
 Stage de la première année du Magistère Science de la Matière, Lyon 1 – ENS Lyon, 97 - 98
 Sujet: Génération de la seconde harmonie dans un micro-cylindre de LiNbO_3 , étude des propriétés du micro-doubleur.

- **Stéphane Ramstein**, co-encadrement
 Directeur de stage : Jean-Pierre Wolf
 Stage du DEA Particules, Noyaux, Atomes et Photons, Lyon 1 – ENS Lyon, 98 - 99
 Sujet: Diffusion nonlinéaire et fluorescence à deux photons en régime femtoseconde dans une micro-gouttelette dopée.

- **Guillaume Ange**, encadrement (directeur de stage)
 Stage du DEA Particules, Noyaux, Atomes et Photons, Lyon 1 – ENS Lyon, 99 - 00
 Sujet: Rétro-diffusion nonlinéaire de la lumière blanche générée dans des filaments induits par des impulsions femtoseconde ultra-intense se propageant dans l'air.

- **Romain Volk**, encadrement (maître de stage)
 Stage de la deuxième année du Magistère Science de la Matière, Lyon 1 – ENS Lyon, 99 - 00
 Sujet: Rétro-diffusion nonlinéaire et l'évolution du spectre dans des filaments induits par des impulsions femtoseconde ultra-intense se propageant dans l'air.

- **Didier Mondelain**, co-encadrement
 Directeur de stage : Jean-Pierre Wolf
 Thèse de Doctorat, Université Claude Bernard-Lyon 1, en cours.

Table des matières

Introduction générale	1
------------------------------------	---

Première partie :

Manipulation d'Atome par Laser : Ralentissement, Refroidissement et Compression

Chapitre I.1 Ralentissement et Refroidissement d'un Jet Atomique du Césium par Diodes Laser et Observation des Franges de Ramsey sur un Jet Atomique Monocinétique

I.1.1 Rappel historique et introduction.....	6
I.1.1.a De la pression de radiation au refroidissement Doppler.....	6
I.1.1.b Refroidissement par balayage de fréquence (frequency chirping cooling).....	7
I.1.1.c Refroidissement par accord de résonance avec l'effet Zeeman dans un champ magnétique inhomogène (Zeeman tuning cooling).....	8
I.1.1.d Refroidissement à deux lasers avec balayage de fréquence.....	9
I.1.2 Ralentissement et refroidissement d'un jet atomique de césium par diodes laser et observation du signal de l'horloge atomique (franges de Ramsey) sur un jet atomique de césium monocinétique.....	9
I.1.2.a Présentation du projet.....	9
I.1.2.b Refroidissement d'un jet atomique de césium par diodes laser avec balayage de fréquence.....	10
α. Résultats obtenus avec des diodes laser en fonctionnement libre.....	10
β. Résultats obtenus avec la diode de refroidissement stabilisées par le couplage optique avec une cavité Fabry-Perot	12
I.1.2.c Observation du signal de l'horloge atomique (Franges de Ramsey) sur un jet refroidi par laser.....	12
α. Résultats obtenus avec des diodes laser en fonctionnement libre.....	15
β. Résultats obtenus avec des diodes laser stabilisées.....	16
I.1.3 Conclusion	19

Chapitre I.2 Mélasse Optique à une Dimension : Refroidissement Sub-Doppler

I.2.1 Découverte d'un nouveau mécanisme de refroidissement.....	24
I.2.1.a Température sub-Doppler dans les mélasses optiques.....	24
I.2.1.b L'effet Sysiphe	24
I.2.1.c Refroidissement dans un champ laser à polarisation tournant.....	26
I.2.2 Contribution de l'équipe d'atomes froids au Laboratoire Aimé Cotton : Etude systématique des mélasses optiques sub-Doppler à une dimension.....	28

I.2.2.a	Montage expérimental.....	29
I.2.2.b	Comparaison des mélasses sub-Doppler de différentes configurations et pour les deux types de transitions : $J \rightarrow J+1$ et $J \rightarrow J-1$	30
I.2.2.c	Mélasses en dérive induites par un champ magnétique statique	33
α .	Configuration $\sigma^+ - \sigma^-$	33
β .	Configuration lin. \perp lin.....	34
I.2.3	Conclusion.....	35

Chapitre I.3 Transfert Adiabatique de Population et de Quantité de Mouvement : Manipulation Cohérente d'Atomes par Laser

I.3.1	Optique et interférométrie atomiques : motivation pour une manipulation cohérente d'atomes par laser	38
I.3.2	Transfert adiabatique de population et de quantité de mouvement via un état piège.	38
I.3.2.a	Transition Λ et état piège.....	39
I.3.2.b	Transfert adiabatique de population et de quantité de mouvement via un état Piège.....	41
I.3.3	Mise en œuvre du transfert adiabatique de population et de quantité de mouvement avec l'atome de césium	43
I.3.3.a	Présentation de la transition utilisée.....	43
I.3.3.b	Dispositif expérimental.....	43
α .	Faisceau de pompage.....	44
β .	Faisceaux de transfert.....	44
χ .	Faisceau d'analyse.....	45
δ .	Faisceau de détection.....	45
ϵ .	Détections.....	45
I.3.3.c	Résultats expérimentaux.....	45
α .	Transfert de population.....	45
β .	Influence des niveau voisins.....	47
χ .	Transfert de quantité de mouvement.....	49
I.3.4	Conclusion.....	50

Chapitre I.4 Piège Opto-Magnétique à Deux Dimensions : Entonnoir à Atomes

I.4.1	De la mélasse optique au piège opto-magnétique.....	54
I.4.1.a	Force de rappel dans un piège opto-magnétique.....	54
I.4.1.b	Piège opto-magnétique à trois dimensions.....	55
I.4.1.c	Piège opto-magnétique à deux dimensions : entonnoir à atomes.....	56
I.4.2	Contribution de notre équipe au Laboratoire Aimé Cotton : compression d'un jet de césium pré-orienté.....	56
I.4.2.a	Présentation de la transition utilisée.....	56
I.4.2.b	Montage expérimental.....	57
I.4.2.c	Observation de l'effet de l'entonnoir.....	58
I.4.2.d	Force de piège dépendante de la valeur m_F dans un système multi-V	60

I.4.2.e Piège opto-magnétique assisté par un pompage Zeeman	61
I.4.2.f Pré-orientation par transfert adiabatique.....	63
I.4.3 Conclusion.....	64

Deuxième Partie :

Développement de Lasers : de l'Ultra-Stable à l'Ultra-Court

Chapitre II.1 Diodes Laser Ultra-Stables

II.1.1 Introduction.....	70
II.1.1.a Utilisation des diodes laser dans la physique atomique.....	70
II.1.1.b Utilisation et développement des diodes laser au Laboratoire Aimé Cotton...70	
II.1.1.c Atome de césium et diodes laser AlGaAs.....	71
II.1.1.d Largeur spectrale d'une diode laser.....	72
II.1.2 Couplage optique résonant avec une cavité Fabry-Perot confocale.....	72
II.1.2.a Montage.....	73
II.1.2.b Résultats.....	74
II.1.3 Lasers à cavité étendue avec des diodes commerciales.....	77
II.1.3.a Montage.....	77
II.1.3.b Résultats.....	78
II.1.4 Diodes laser en batterie mises en phase par injection.....	80
II.1.4.a Eléments théoriques.....	80
II.1.4.b Montage.....	80
II.1.4.c Résultats.....	81
II.1.5 Conclusion.....	84

Chapitre II.2 Lasers à Etat Solide

II.2.1 Lasers solides et leur application dans la télédétection de pollutions atmosphériques.....	88
II.2.1.a Lasers solides vibroniques à bande d'émission large.....	88
II.2.1.b Principales propriétés du cristal Ti:Saphir	88
II.2.1.c Principales propriétés du cristal Cr:LiSAF.....	90
II.2.1.d Application des lasers à Ti:Saphir et à Cr:LiSAF à la détection des polluants atmosphériques.....	92
II.2.2 Initiation par injection d'un laser à Ti:Saphir pompé par flash-lampe.....	94
II.2.2.a Montage.....	94
II.2.2.b Résultats.....	95
II.2.3 Oscillateur femtoseconde Ti:Saphir à auto-blocage de modes pour une chaîne d'amplification à dérivée de fréquence.....	97
II.2.3.a Configuration de la cavité Ti:Saphir construite au LASIM.....	98

II.2.3.b	Simulation avec les matrices ABCD nonlinéaires.....	99
II.2.3.c	Procédure d'alignement du régime à blocage de modes.....	100
II.2.3.d	Principales caractéristiques de l'oscillateur et de la chaîne d'amplification..	101
II.2.4	Lasers Cr:LiSAF pompés par diodes continue et à blocage de modes.....	103
II.2.4.a	Configuration de la cavité Cr:LiSAF construite au LASIM.....	103
II.2.4.b	Régime continu.....	104
II.2.4.c	Régime à blocage de modes.....	105
II.2.5	Spectromètre intra-cavité (ICLAS) avec un laser Cr:LiSAF pompés par diodes...	105
II.2.6	Conclusion.....	106

Troisième Partie :

Ultra-Courtes et Ultra-Intenses : Impulsions Femtosecondes à l'Exploration de la Matière

Chapitre III.1 Processus optiques dans des microcavités excités par des impulsions femtosecondes

III.1.1	Introduction	114
III.1.2.	Propriétés d'un micro-doubleur en fibre de LiNbO ₃ excité par impulsions Femtosecondes.....	115
III.1.2.a	Propriétés du cristal nonlinéaire de LiNbO ₃	115
III.1.2.b	Dispositif expérimental	115
	α. Elaboration des fibres de LiNbO ₃	115
	β. Montage optique pour la caractérisation des fibres LiNbO ₃	116
III.1.2.c	Résultats expérimentaux et discussions	117
	α. Polarisation de la seconde harmonique	118
	β. Efficacité de conversion	118
	χ. Distributions angulaires dans le plan perpendiculaire à la fibre	120
	δ. Distributions angulaires dans le plan contenant la fibre	121
	ε. Couplage dans la direction orthogonale de la seconde harmonique	123
	φ. Distribution angulaire pour une fibre de plus large diamètre	124
	γ. Plage d'accordabilité	125
	η. Application : micro-doubleur à large bande	126
III.1.2.d	Résumé	126
III.1.3.	Distribution angulaire de la fluorescence induite par absorption multi-photonique des molécules dans une micro-gouttelette.....	127
III.1.3.a	La rétro-diffusion de la fluorescence privilégiée et le principe de réciprocité	127
III.1.3.b	Simulation d'Optique géométrique par le traçage de rayons	129
III.1.3.c	Montage expérimental	130
III.1.3.d	Résultats expérimentaux et discussions	131

III.1.3.e Résumé	132
III.1.4. Conclusion	132
 Chapitre III.2 Projet Teramobile : Impulsions terawatt appliquées à la détection lidar des polluants atmosphériques	
III.2.1 Introduction	136
III.2.1.a Mise en place du projet	136
III.2.1.b Motivation et contexte scientifique	137
α . Filamentation et génération de continuum	137
β . Utilisation des filaments de lumière blanche pour la détection lidar des polluants atmosphériques	137
χ . Questions soulevées par la nouvelle application	138
III.2.2 Processus physiques jouant un rôle dans la propagation des impulsions ultra-courtes et ultra-intenses dans l'atmosphère	139
III.2.2.a Ce que nous apprend un livre de l'Optique Nonlinéaire	139
α . Réponses nonlinéaires d'un milieu à une excitation optique	139
β . Auto-focalisation induite par l'effet Kerr	140
χ . Automodulation de phase et la génération du continuum	140
III.2.2.b Filamentation dans l'air : observations et modèles	140
α . Observations expérimentales	140
β . Le modèle de l'auto-canalisation (Self-channeling)	141
χ . Le modèle du foyer déplaçant (moving focus)	141
δ . Le modèle de réapprovisionnement dynamique (Dynamic spatial replenishment model)	142
III.2.3 Détermination du profil spectral du supercontinuum	142
III.2.4 Spectre d'absorption du méthane avec le supercontinuum	144
III.2.5 Optimisation de l'émission du continuum.....	145
III.2.6 Démonstration d'une émission vers l'arrière du supercontinuum par un filament.....	147
III.2.6.a L'enjeu de l'investigation	147
III.2.6.b Distribution angulaire du continuum autour d'un filament comparée aux diffusion de Rayleigh et de Mie	147
α . Montage expérimental	147
β . Calibration avec le régime linéaire	148
χ . Rétro-diffusion nonlinéaire préférentielle due à une auto-réflexion sur un gradient de l'indice longitudinale induit par une impulsion laser	149
δ . Comportement en fonction de longueur d'onde	151
III.2.7 Conclusion.....	152
 Conclusion et Perspectives.....	 157
 Annexe A : Liste des travaux publiés.....	 159
 Annexe B : Quelques publications.....	 163

Introduction Générale

Depuis 1985, le début de ma thèse de doctorat, mes activités de recherche se sont principalement déroulées dans les trois laboratoires de recherche : le Laboratoire de l'Horloge Atomique (LHA) à Orsay ; le Laboratoire Aimé Cotton (LAC) à Orsay ; et le Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire (LASIM) à Villeurbanne. Je me suis intéressé à un certain nombre de thèmes de recherche fondamentaux ou appliqués dans de différents domaines qui sont la Métrologie du temps et des fréquences, le refroidissement d'atomes par laser, la Physique des lasers, l'Optique non-linéaire, la Spectroscopie laser appliquée à la détection de polluants atmosphériques (Lidar) et plus récemment, la propagation et de l'application des impulsions femtosecondes terawatt dans la détection de la pollution atmosphérique (le projet Teramobile).

Dans ce document de l'Habilitation, je donne un résumé de mes activités de recherche réalisées après la soutenance de thèse. Il s'agit d'une période de onze ans qui remonte à la fin de 1988. Je peux diviser cette période en deux sous périodes. La période Aimé Cotton est consacrée au refroidissement d'atomes par laser ; et celle au LASIM à la thématique lidar.

Le document est organisé en trois parties :

- I. Atomes manipulés par laser : ralentissement, refroidissement et compression ;
- II. Développement de lasers : de l'ultra-stable à l'ultra-court ;
- III. Ultra-courtes et ultra-intenses : impulsions femtoseconde à l'exploration de la matière.

La première partie décrit les résultats obtenus pendant mon séjour au Laboratoire Aimé Cotton (1988-1994) dans l'équipe des atomes froids dirigée d'abord par Jean-Louis Picqué puis après son départ pour la direction du CNRS, par Pierre Pillet. Dans cette partie sont présentées les expériences suivantes:

- Ralentissement et refroidissement d'un jet atomique du césium par diodes laser et observation des franges de Ramsey sur un jet atomique monocinétique ;
- Mélasse optique à une dimension : refroidissement sub-Doppler ;
- Transfert adiabatique de population et de quantité de mouvement : manipulation cohérente d'atomes par laser ;
- Piège opto-magnétique à deux dimensions : entonnoir à atomes.

La deuxième partie donne les détails de mes activités consacrées aux développements des systèmes lasers dont les performances sont essentielles au succès des expériences. Une partie de ces activités est réalisée au Laboratoire Aimé Cotton pour les expériences de refroidissement laser, elle consiste à des diodes laser ultra-stables avec une largeur spectrale compressée à inférieure à 100 kHz. Une autre partie est réalisée au Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire à Université Claude Bernard-Lyon 1, elle concerne des lasers d'impulsions ultra-courtes avec une durée inférieure à 100 fs. Cette partie constitue de quelques sorte un trait d'union entre mes activités de recherche qui ont besoin d'une haute résolution spectrale et celles qui sont caractérisées par une durée ultra-courte et une intensité extrêmement forte.

Dans la troisième partie, je développe mes activités de recherche au sein de l'équipe Laser et Environnement dirigée par Jean-Pierre Wolf au Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire à Université Claude Bernard-Lyon 1 (depuis septembre 1994). Les deux chapitres de cette partie sont consacrés respectivement à des travaux sur l'optique non-linéaire dans une microcavité optique excitée par des impulsions femtosecondes, et ceux relatifs à des impulsions ultra-intenses. Dans le premier chapitre de cette partie, je présente d'abord l'étude d'un micro-doubleur avec une fibre de niobate de lithium. Je décris ensuite l'étude sur la

distribution angulaire de la fluorescence des molécules dissoutes dans une micro-gouttelette excitées par absorption multi-photonique. Dans le deuxième chapitre de cette partie, je présente l'étude de la propagation non-linéaire des impulsions ultra-intenses dans l'air et l'application de celles-ci à la détection de la pollution atmosphérique. Ces travaux sont réalisés dans le cadre du projet Teramobile.

Une conclusion générale est donnée à la fin des trois parties principales du document. Et j'essaie d'y dégager les perspectives.

A la fin de chaque chapitre, une bibliographie (non exhaustive) est donnée, et j'y adjoints une liste de nos publications et des thèses ou des rapports de stage soutenus dans notre équipe sur la thématique du chapitre concerné.

A la fin de ce document, en annexe A, une liste de nos travaux publiés est donnée, regroupés en trois catégories : I. Articles publiés dans des revues et proceedings de conférences avec comité de lecture ; II. Présentations orales dans des conférences ; III. Présentation par affiche dans des conférences. Dans l'annexe B, j'ai reproduit six de nos articles publiés choisis en raison de leur représentativité de mes activités de recherche au Laboratoire Aimé Cotton et au LASIM. Ces six articles retracent de quelque sorte, ma trajectoire, en montrant l'évolution de mes intérêts scientifiques et celle de ma maîtrise des techniques expérimentales.

Pour la rédaction, un effort est fourni pour dégager les contextes de chaque projet de recherche entrepris. Cet effort est nécessaire pour situer nos travaux dans la mouvance de la recherche de cette dernière décennie. Les détails expérimentaux sont rassemblés dans ce document, ce qui l'alourdit inévitablement. Mais je pense qu'ils sont nécessaires pour deux raisons : 1) il est intéressant de tracer les évolutions de la méthodologie et de la technologie en se mettant dans le contexte de l'époque ; 2) il est intéressant de consigner les détails expérimentaux dans un document autre que les cahiers de manip, cette consignation est utile pour de futures expériences.

Première Partie

Manipulation d'Atome par Laser : Ralentissement, Refroidissement et Compression

Chapitre I.1

Ralentissement et Refroidissement d'un Jet Atomique de Césium par Diodes Laser et Observation des Franges de Ramsey sur un Jet Atomique Monocinétique

I.1.1 Rappel historique et introduction

I.1.1.a De la pression de radiation au refroidissement Doppler

Interagissant avec la matière, la lumière exerce une force sur celle-ci, c'est la Pression de Radiation. Dès 1933, R. Frisch¹ a réalisé une expérience de déflexion d'un jet atomique par la lumière. Un jet de sodium était éclairé transversalement par une lampe à sodium. L'absorption d'un photon par un atome affecte sa vitesse transversale par la quantité, $v_R = h\nu / cM$, puisque le premier porte une quantité de mouvement, $h\nu / c$. v_R est la vitesse de recul dont la valeur pour l'atome de sodium est de $2,93 \times 10^{-2}$ m/s. En 1970, A. Askin² exprimait la force exercée par une radiation résonante sur un atome sous une forme simple : $F = (h/\lambda)\tau_N^{-1}f$, ou τ_N est la durée de vie du niveau excité et f la fraction de temps où l'atome reste dans l'état excité. C'est donc une force saturable, la valeur de saturation est donnée par $F_0 = h/(2\lambda\tau_N)$. Appliquant à un atome alcalin telle que le sodium ou le césium, la force de saturation produit une accélération de $9,14 \times 10^5$ m/s² ou $5,76 \times 10^4$ m/s² respectivement. Il s'agit d'une accélération gigantesque dépassant de plusieurs ordres de grandeur celle due à la gravitation.

En 1972 au Laboratoire Aimé Cotton à Orsay, Jean-Louis Picqué et Jean-Louis Vialle³ ont repris l'expérience de Frisch, et démontré sans aucune ambiguïté la déflexion d'un jet atomique (le sodium et le césium) par une lumière résonante. Ils ont notamment suggéré l'utilisation de l'effet mécanique de la lumière pour détecter la résonance optique comme une nouvelle méthode de la spectroscopie.

La première expérience utilisant un laser pour dévier un jet atomique a été réalisée quelques semaines plus tard à l'Universität Köln par R. Schieder, H. Walther et L. Wöste⁴. Dans cette expérience, un jet atomique de sodium est dévié par un faisceau laser de puissance de 10 mW délivré par un laser à colorant accordable.

En 1975, T.W. Hänsch et A.L. Schawlow proposa le refroidissement d'un gaz atomique par laser^{5*}. L'idée essentielle est de plonger un gaz d'atome (fréquence de résonance ν_0) dans la zone définie par l'intersection des six faisceaux laser se propageant en sens contraires deux par deux suivant les trois axes orthogonaux. Le profil spectral du laser est fixe et recouvre le côté de basse fréquence du profil Doppler (désaccord rouge) de l'ensemble d'atomes en équilibre thermique. Alors quelle que soit la vitesse, v , d'un atome, il absorbe préférentiellement des photons dont le vecteur d'onde a une large composante dans la direction opposée à son mouvement. Puisque l'effet Doppler induit dans ce cas-là un déplacement sur la fréquence laser, ν_L , d'une quantité, $\Delta\nu = \nu_L v/c = v/\lambda$, qui comble le désaccord initial. Une telle absorption suivie d'une émission spontanée induit une diminution de la vitesse atomique d'une quantité, $\Delta v = h\nu/Mc$. Le processus se répète jusque ce que la largeur Doppler due à la distribution de vitesses résiduelles devient aussi petite que la largeur naturelle de la transition atomique.

Pour illustrer les effets du refroidissement laser, les auteurs de cette proposition utilisaient un gaz d'atomes de magnésium dont la température initiale, T_0 , est de 600 K. A cette

* Dans la même année, D. Wineland et H. Dehmelt ont proposé un autre type de refroidissement laser. Différent du mécanisme proposé par Hänsch et Schawlow, qui s'applique plus naturellement aux atomes libres, la proposition de Wineland et Dehmelt s'applique alors plus naturellement aux particules atomiques confinées dans un potentiel, des ions piégés typiquement. En France, le piège et le refroidissement laser d'ions magnésium ont été réalisés au Laboratoire d'Horloge Atomique dans l'équipe de F. Plumelle et M. Desainfusien. J'ai pu contribuer aux activités de recherche de cette équipe dans le cadre de ma thèse de Doctorat entre 1985 et 1988. Le piège et le refroidissement d'ions ne seront pas concernés par ce document, puisque celui-ci est consacré exclusivement à mes activités de recherche après la thèse.

température correspond un élargissement Doppler de $3,8 \times 10^9$ Hz (FWHM) autour de la raie singulet à 285,2 nm. A la fin du refroidissement, la largeur Doppler résiduelle est de l'ordre de la largeur naturelle de la raie atomique qui est déterminée par l'inverse de la durée de vie radiative du niveau excité, $\tau_R = 2$ ns, $\Gamma = 2\pi \cdot 8 \times 10^7$ Hz. Donc la vitesse atomique est réduite par un facteur d'environ 50, et la température finale est réduite à $600/50^2 = 0,24$ K. Le refroidissement peut être réalisé dans un temps très bref, puisque le nombre de processus élémentaires d'absorption-émission est donné par le rapport, $v_0/\Delta\nu$, où v_0 est la vitesse initiale, $v_0 = \sqrt{3kT_0/M} = 80000$ cm/s, et $\Delta\nu = 6$ cm/s. Donc $v_0/\Delta\nu \approx 13000$, la durée de refroidissement est $t_0 = \tau_R v_0/\Delta\nu \approx 3 \times 10^{-5}$ s. Pendant le refroidissement les atomes se déplaceront sur une distance de l'ordre de $l_0 = v_0 t_0/2 \approx 1$ cm.

Donc les aspects fondamentaux de ce qu'on appelle plus tard le Refroidissement Doppler ont été discutés dans la proposition initiale. Avec une théorie plus élaborée^{6,7} on considère le réchauffement dû à la nature aléatoire des processus d'absorption et d'émission de photons. La température limite du refroidissement Doppler est alors donnée par $k_B T_{\min} = \hbar\Gamma/2$. Pour la réalisation expérimentale, les auteurs proposaient d'utiliser des faisceaux laser de large bande spectrale pour couvrir le côté de basse fréquence du profil Doppler de la raie d'absorption atomique. Une largeur spectrale importante associée à une température initiale élevée nécessite une grande puissance laser, estimée à 500 W par faisceau. Cette puissance exclut l'utilisation des lasers continus dans les expériences de refroidissements laser.

I.1.1.b Refroidissement par balayage de fréquence (frequency chirping cooling)

En effet un grand nombre de cycle d'absorption-émission est nécessaire pour produire un refroidissement significatif. Pour un laser monomode à fréquence fixe, ce nombre est extrêmement limité. Deux effets contribuent à cette limitation. Le plus important est le déplacement de la fréquence de résonance apparente d'un atome lorsque celui-ci est ralenti par le faisceau laser. Par exemple pour la raie D₂ du césium ($\lambda = 852,1$ nm) un changement de 1 m/s en vitesse induit un déplacement Doppler de 1,17 MHz. Puisque cette raie a une largeur naturelle de 5,22 MHz, un ralentissement de 4,5 m/s suffit à décaler la résonance atomique.

En 1976, V.S. Letokhov et al.⁸ ont proposé le refroidissement adiabatique. L'idée est d'accompagner le ralentissement par une augmentation de fréquence laser (frequency chirping), de manière à maintenir les atomes en résonance avec le laser au cours de décélération. Dans le même papier, les auteurs ont proposé d'utiliser des atomes pré-refroidis par le balayage de fréquence pour remplir un piège optique formé dans une onde stationnaire. C'est précisément la configuration expérimentale utilisée plus tard pour remplir une mélasse optique ou un piège opto-magnétique.

Plus précisément, le refroidissement est adiabatique si au cours du refroidissement la relation suivante reste valable : $v_L(t)[1 + v(t)/c] = v_0$. Soit a_{\max} l'accélération de saturation, alors à l'instant t , la vitesse minimale est de $v_{\min}(t) = v_0 - a_{\max}t$. Donc pour que le refroidissement soit adiabatique, la fréquence laser doit évoluer en fonction du temps selon:

$$v_L(t) \leq \frac{v_0}{1 + (v_0 - a_{\max}t)/c}, \text{ ce qui veut dire la dérivée de la fréquence est donnée par :}$$

$$\frac{dv_L(t)}{dt} \leq \frac{v_0 a_{\max}}{c} \frac{1}{[1 + (v_0 - a_{\max}t)/c]^2}. \text{ Pour un atome au cours de décélération le facteur}$$

$\frac{1}{[1+(v_0 - a_{\max}t)/c]^2}$ est plus petit mais voisin de 1, on peut écrire la dérivée de fréquence plus simplement : $\frac{dv_L(t)}{dt} < \frac{v_0 a_{\max}}{c} = \frac{a_{\max}}{\lambda_0}$. Exemple pour l'atome de sodium et l'atome césium dont la raie D_2 a une longueur d'onde respectivement de 589,0 nm et 852,1 nm, la dérivée de fréquence pour une décélération adiabatique est inférieure à 1550 MHz/ms et à 67,6 MHz/ms respectivement.

En 1979 à l'Institute of Spectroscopy à Moscou, V.I. Balykin et al.⁹ réalisa la première expérience de refroidissement d'un jet thermique d'atomes de sodium avec un laser colorant continu monomode dont la fréquence était balayée à une vitesse de 370 MHz/ms pendant une ms et dont la puissance était de 10mW/cm². Le jet avec une température initiale de 300°C était refroidi après une longueur d'interaction de 37 cm. Le spectre de fluorescence montre une déformation du profil initial : la population des atomes rapides diminue alors celle des atomes lents augmente, ce qui mettait en évidence l'effet de refroidissement.

Dans le même papier, les auteurs ont discuté d'un autre effet limitant le nombre de cycle d'absorption-émission d'un atome dans un champ laser résonant : le pompage optique. En effet un atome peut être pompé optiquement dans un autre niveau où il perd le couplage avec le faisceau laser. Ils proposaient d'utiliser un faisceau polarisé en σ^+ et accordé sur la transition $3^2S_{1/2} F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2} F'=3$. Un champ magnétique statique était alors utilisé pour fixer l'axe de quantification. Le pompage optique induit une accumulation de population dans le sous-niveau Zeeman $F=2, M_F=2$ du fondamental. Avec une puissance supérieure à celle de la saturation de la transition (6,33 mw/cm²), le temps de polarisation est de 2 μ s, ce qui est très bref devant le temps de refroidissement. Une transition cyclante se réalise entre le sous-niveau Zeeman du fondamental $3^2S_{1/2} F=2, M_F=2$ et celui du niveau excité $3^2P_{3/2} F'=3, M_{F'}=3$. Néanmoins cette transition n'est pas tout à fait fermée, la séparation par rapport à la transition hyperfine voisine est seulement de 60 MHz.

I.1.1.c Refroidissement par accord de résonance avec l'effet Zeeman dans un champ magnétique inhomogène (Zeeman tuning cooling)

Une configuration nouvelle de refroidissement a été proposée par William D. Phillips et Harold Metcalf en 1981 au National Bureau of Standards à Washington¹⁰. Dans leur montage destiné à ralentir et à refroidir un jet atomique de sodium, la fréquence d'un laser monomode était fixe sur le côté de basse fréquence du profil Doppler de la résonance atomique. Un solénoïde produit un champ magnétique axial inhomogène dans la zone où le faisceau laser éclaire le jet atomique en contre courant. Le jet atomique voit l'intensité du champ magnétique diminuer lorsqu'il s'éloigne du four.

Pour un faisceau laser de polarisation σ^+ induisant la transition cyclante $3^2S_{1/2} F=2, M_F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2} F=3, M_F=3$, le champ magnétique inhomogène produit deux effets. Premièrement, il réduit le pompage optique vers l'autre niveau hyperfin du fondamental, $3^2S_{1/2} F=1$, parce que le déplacement Zeeman isole la transition cyclante des autres transitions. Deuxièmement, la variation du champ magnétique permet de compenser la variation du déplacement Doppler lorsqu'un atome est ralenti et de le maintenir en résonance avec le laser tout au long du refroidissement.

A la différence du refroidissement par balayage de fréquence le refroidissement avec un champ magnétique inhomogène produit un jet atomique froid continu. Une compression

spatiale longitudinale est aussi réalisée en même temps que la compression en vitesse, puisque les atomes sont décélérés à leur vitesse finale à la sortie du solénoïde. Avec ce dispositif, en 1982, le groupe au NBS a produit un jet atomique de sodium froid avec une vitesse moyenne de 40 m/s et une température de 40 mK associée à la vitesse relative des atomes¹¹.

I.1.1.d Refroidissement à deux lasers avec balayage de fréquence

En 1985, un groupe de chercheurs au JILA et au NBS à Boulder a réalisé une expérience de refroidissement à « deux lasers », dans laquelle le problème de pompage optique est définitivement résolu¹². En fait, l'utilisation des modulateurs électrooptiques de large bande passante a permis d'une part le balayage rapide de la fréquence d'un laser à colorant nécessaire à la compensation du déplacement Doppler au cours du refroidissement ; et d'autre part de produire une deuxième fréquence laser décalée par rapport à la fréquence principale d'une quantité de 1772 MHz. Ce « deuxième laser », appelé le laser de repompage, excite la transition hyperfine $3^2S_{1/2} F=1 \rightarrow 3^2P_{3/2} F'=2$. Son rôle est de récupérer la fuite de population atomique du niveau $F=2$ du fondamental, ce qui garantit une transition fermée pendant les 20 000 cycles d'absorption-émission nécessaires pour arrêter un jet atomique thermique de sodium.

I.1.2 Ralentissement et refroidissement d'un jet atomique de césium par diodes laser et observation du signal de l'horloge atomique (franges de Ramsey) sur un jet atomique de césium monocinétique

I.1.2.a Présentation du projet

A la fin des années 80, la technique de refroidissement par laser est déjà bien développée. Des projets d'application se précisent, encouragés aussi par la démonstration de l'utilisation des diodes laser pour refroidir un jet atomique de césium^{13,14}. Ces lasers à dimensions micrométriques promettaient une production d'atomes froids pour un coût relativement faible.

Dans le domaine de la métrologie du temps, les performances des horloges atomiques classiques sont limitées par l'effet Doppler du premier et du second ordre. Par exemple, l'étalon primaire du temps, l'horloge atomique à césium, fonctionne avec un jet atomique thermique qui s'écharpe du four avec une température typique de 380 K, ce qui correspond à une vitesse la plus probable de 267 m/s et une dispersion de plus de 200 m/s.

La vitesse moyenne élevée limite le temps de transit (Δt) dans la cavité micro-onde, ce qui d'une part augmente la largeur de la transition ($\Delta\nu \propto 1/\Delta t$), et d'autre part induit l'effet de

« cavity phase shift » ($\frac{\Delta\nu}{\nu} = \frac{2\pi}{\nu} \frac{\Delta\Phi}{\Delta t}$) qui contribue une part importante de 8×10^{-14} dans la

somme quadratique des incertitudes affectant la fréquence de l'horloge (9×10^{-14})¹⁵. Une diminution de la vitesse du jet atomique promet donc une amélioration immédiate de la performance de l'horloge atomique. Parmi d'autres sources d'incertitude, l'une des

principales (1×10^{-14}) provient de l'effet Doppler du second ordre : $\frac{\Delta\nu}{\nu} = -\frac{1}{2} \frac{v^2}{c^2}$. L'évaluation

de cet effet, qui suppose une mesure précise de la distribution des vitesses, se trouverait facilitée dans le cas d'une distribution monocinétique ou étroite. De plus, l'effet Doppler du second ordre devient négligeable ($\sim 1 \times 10^{-18}$) pour des atomes ralentis à une vitesse de 1 m/s.

A partir de 1988, en collaboration avec André Clairon du Laboratoire Primaire du Temps et des Fréquences (LPTF) de l'Observatoire de Paris, Jean-Louis Picqué montait au Laboratoire Aimé Cotton (LAC) une expérience destinée d'abord à refroidir un jet atomique

de césium par diode laser et ensuite à observer la transition micro-onde entre les deux niveaux hyperfins du césium (transition de l'horloge atomique) sur un jet un jet monocinétique. C'est à ce moment-là, après ma thèse de Doctorat réalisée au Laboratoire de l'Horloge Atomique, je me suis rejoint l'équipe de Jean-Louis Picqué.

Bien que les principes du refroidissement d'un jet atomique étaient déjà connus, de nombreuses questions attendaient une réponse quant à la réalisation d'une horloge atomique à atomes refroidis. Les enjeux de notre expérience sont donc multiples :

- Maîtriser l'utilisation des diodes laser dans une expérience de refroidissement laser ;
- Trouver la configuration expérimentale pour la détection du signal de l'horloge atomique avec un jet refroidi par la technique de balayage de fréquence ;
- Evaluer la performance d'une horloge atomique utilisant des atomes refroidis par laser.

I.1.2.b Refroidissement d'un jet atomique de césium par diodes laser avec balayage de fréquence

α. Résultats obtenus avec des diodes laser en fonctionnement libre

Au laboratoire Aimé Cotton, nous utilisons la technique de refroidissement par balayage de fréquence. L'emploi de diodes laser facilite un balayage rapide de la fréquence laser puisque la fréquence d'une diode laser en fonctionnement libre est directement contrôlable par le courant appliqué. Cette technique est préférable grâce à l'absence de champ magnétique. L'observation du signal de l'horloge atomique peut se faire dans la zone de refroidissement.

La figure suivante montre notre montage expérimental.

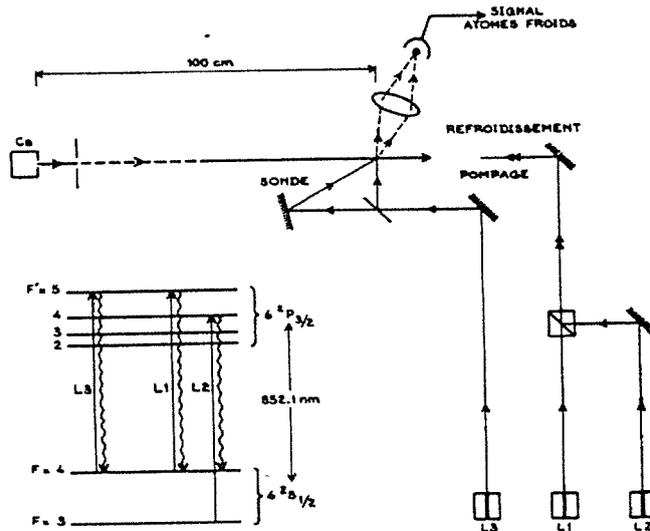


Fig. I-1-1. Montage expérimental pour le ralentissement et le refroidissement d'un jet de césium avec la technique de balayage de fréquence.

Le four à césium est chauffé à une température typique de 425°K (vitesse la plus probable 280 m/s). Des atomes de césium s'échappent de l'enceinte du four par une fente 3 mm de hauteur sur 1 mm de largeur. Deux diaphragmes situés respectivement à 92 mm et 216 mm du four réduisent la divergence du jet atomique à 36 mrad. Le premier diaphragme est en graphite, il sert aussi à piéger la vapeur de césium. Dans le même but, le deuxième

diaphragme est refroidi à l'azote liquide. Un fil chaud de diamètre de 100 μm se trouvant au bout de l'enceinte mesure le flux d'atomes, il est aussi utilisé pour déterminer le profil du jet puisqu'il est monté sur une platine de déplacement micrométrique. Typiquement le fil chaud mesure un flux de $1,25 \times 10^9$ atomes/s, ce qui correspond à une densité atomique dans le jet de l'ordre de 6×10^6 atomes/ cm^3 . Trois pompes à diffusion assurent un vide mieux que 10^{-7} Torr à l'intérieur de l'enceinte.

Deux faisceaux laser (L1 et L2) sont envoyés dans l'enceinte à travers un hublot, ils sont superposés sur le jet atomique et se propagent à contre courant de celui-ci. Ce sont respectivement le laser de refroidissement et le laser de repompage. Un troisième faisceau laser (L3), le faisceau sonde, croise le jet atomique avec un angle ($\theta = 42^\circ$) dans une zone à une distance de 100 cm du four. La fluorescence induite est collectée et détectée par une photodiode.

Les premières expériences sont réalisées avec des diodes laser en fonctionnement libre. Leur température est stabilisée, et leur longueur d'onde est contrôlée tout simplement par le courant appliqué à la diode. A l'époque, les diodes laser disponibles qui fonctionnent à 852.1 nm (la raie D_2 du césium) sont des diodes de chez HITACHI. Avec un tri plus ou moins hasardeux du fournisseur et un peu de chance, on peut trouver des diodes qui vont bien à 852,1 nm avec une température et un courant supportables par la diode. Typiquement ces diodes délivrent une puissance de 10 mW avec une largeur spectrale environ 10 MHz. Une cellule de césium est utilisée pour accorder précisément la diode sur la raie D_2 .

Le laser de refroidissement (L1) est accordé sur la transition $6^2S_{1/2} F=4 \rightarrow 6^2P_{3/2} F'=5$ et le laser de repompage (L2) est accordé sur la transition $6^2S_{1/2} F=3 \rightarrow 6^2P_{3/2} F'=4$. Les deux faisceaux sont superposés à l'aide d'un cube polariseur. Une lame demi-onde prépare le faisceau de refroidissement à la polarisation circulaire σ^+ . Au cours d'un cycle de refroidissement, les fréquences de ces deux lasers subissent un balayage typiquement de 400 MHz pendant 7 ms sur le flanc basse fréquence du profil Doppler. Pour ce balayage, une rampe de courant est appliquée à la diode. Le départ et la fin du balayage sont contrôlés par un signal d'absorption saturée induit dans une cellule de césium. De différentes vitesses finales sont obtenues par des réglages différents de la fréquence finale de balayage.

Le laser de détection (L3) de faible puissance est aussi accordé sur la transition $6^2S_{1/2} F=4 \rightarrow 6^2P_{3/2} F'=5$. A la fin de chaque cycle de refroidissement, avec un retard réglable, sa fréquence est balayée par une rampe de courant rapide (durée $< 1\text{ms}$). La fluorescence induite par ce faisceau est collectée par un système à deux lentilles semi-sphériques et détectée par une photodiode. Une partie de ce faisceau est envoyée sur une cellule de césium. Le signal d'absorption saturée est enregistré au cours de la rampe de détection, ce qui fournit une échelle de vitesse pour calibrer la distribution de vitesses finale d'un jet ralenti.

Un résultat typique est donné sur la figure I-1-2, dans laquelle on montre un jet immobilisé au bout d'un mètre d'interaction, et un jet ralenti à une vitesse de 125 m/s. Le profil d'absorption saturée est tracé sur la même figure donnant l'échelle en vitesse. La largeur des pics (~ 12 m/s, ~ 12 MHz en échelle de fréquence) est due à la convolution entre la distribution de vitesses résiduelles et la large spectrale de la diode de détection. Si on estime que la distribution de vitesses résiduelles contribue à un élargissement Doppler de l'ordre de quelques MHz, alors la température du pic d'atomes lents observée est de l'ordre de 100 mK.

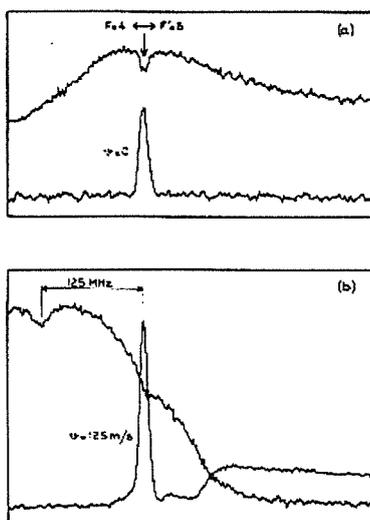


Fig. I-1-2. Distribution de vitesses d'atomes de césium refroidis par des diodes laser en fonctionnement libre.

β . Résultats obtenus avec la diode de refroidissement stabilisée par le couplage optique avec une cavité Fabry-Perot

Comme la largeur spectrale des diodes commerciales est plus grande que la largeur naturelle de la transition D_2 du césium (5,22-MHz), une amélioration est attendue lorsque la fréquence de la diode de refroidissement est stabilisée.

A l'époque, une des techniques de stabilisation disponibles est le couplage avec une cavité Fabry-Perot. On réduit avec cette méthode la largeur spectrale d'une diode en dessous de 100 kHz. Par contre, la puissance de sortie est atténuée à quelque mW. Une amplification par injection (injection mode locking) est alors utilisée pour obtenir un faisceau suffisamment puissant et spectralement pur.

Dans notre montage, une diode HITACHI est stabilisée (diode maître). Une partie de sa puissance (quelques centaines de μW) est injectée dans une diode de chez STC (diode esclave), qui délivre une puissance de 30 mW comme le faisceau de refroidissement. Sa fréquence est entièrement contrôlée par la diode maître. La réalisation d'une diode stabilisée par feed-back et l'amplification par injection sont décrites avec plus de détaille dans la partie II de ce mémoire.

La figure I-1-3 montre les distributions de vitesse obtenues avec un laser de refroidissement stabilisé. On constate que la densité d'atomes ralentis à faibles vitesses augmente par rapport à celle produite avec des diodes non stabilisées. On arrive même à faire retourner le jet atomique avec une densité importante.

I.1.2.c Observation du signal de l'horloge atomique (Fringes de Ramsey) sur un jet refroidi par laser

Pour observer le signal d'horloge atomique sur un jet refroidi, on installe une cavité micro-onde à une distance d'environ 90 cm du four à césium (Fig. I-1-4). Cette cavité a une longueur de 10 mm sur le trajet du jet atomique. Pour compenser le champ magnétique terrestre et appliquer un faible champ magnétique qui lève la dégénérescence Zeeman, la

cavité se trouve au centre des trois paires de bobine de Helmholtz. A la fin de chaque rampe de balayage, une colonne d'atomes froids est produite avec une longueur d'environ d'un mètre. La densité d'atomes froids diminue en remontant vers le four. La figure I-1-5 montre la décroissance de fluorescence induite par le laser de détection accordé sur la transition $F=4 \rightarrow F'=5$ pour un jet ralenti à une vitesse de 50 m/s.

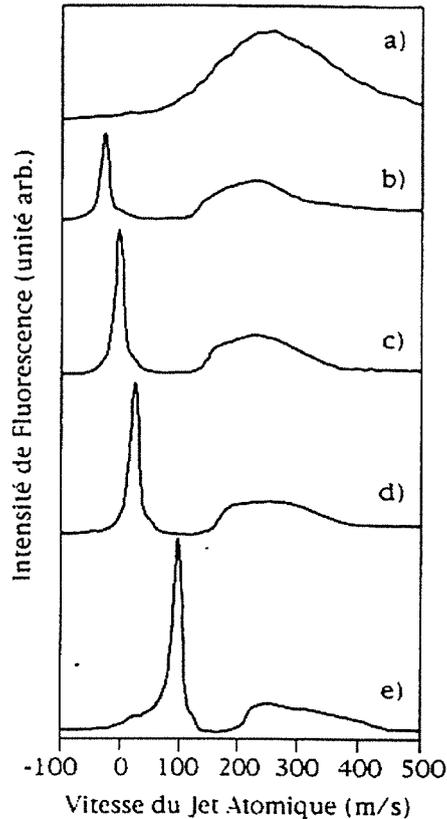


Fig. I-1-3. Distribution de vitesses d'un jet refroidi. a) jet thermique non refroidi ; b)-e) jet ralenti à une vitesse de -25 , 0 , 25 , et 100 m/s respectivement

En amont de la cavité, un faisceau laser dit de préparation issu de la diode L3, croise perpendiculairement le jet atomique. Il est accordé sur la transition $F=4 \rightarrow F'=4$, son rôle est de pomper optiquement la population atomique du niveau $F=4$ vers le niveau $F=3$ du fondamental. Pendant le temps de transit de la colonne d'atomes froids dans la cavité, une micro-onde à $9,192$ GHz y est appliquée, qui induit la transition de l'horloge atomique $F=3, m_F=0 \rightarrow F=4, m_F=0$. L'interaction du type Rabi est réalisée lorsque la micro-onde est appliquée en permanence dans la cavité, alors celle du type Ramsey est obtenue avec une micro-onde pulsée contrôlée par un signal TTL. La transition micro-onde est détectée par un faisceau de détection accordé sur la transition $F=4 \rightarrow F'=5$, qui est obtenu avec un modulateur acousto-optique (AO2). Le faisceau de détection croise le jet atomique avec un angle θ ajusté pour que seuls les atomes ralentis soient détectés. La fluorescence induite par le faisceau de détection est proportionnelle au nombre d'atomes froids re-transférés par la

micro-onde dans le niveau $F = 4$ du fondamental. Cette fluorescence est détectée par une photodiode en silicium.

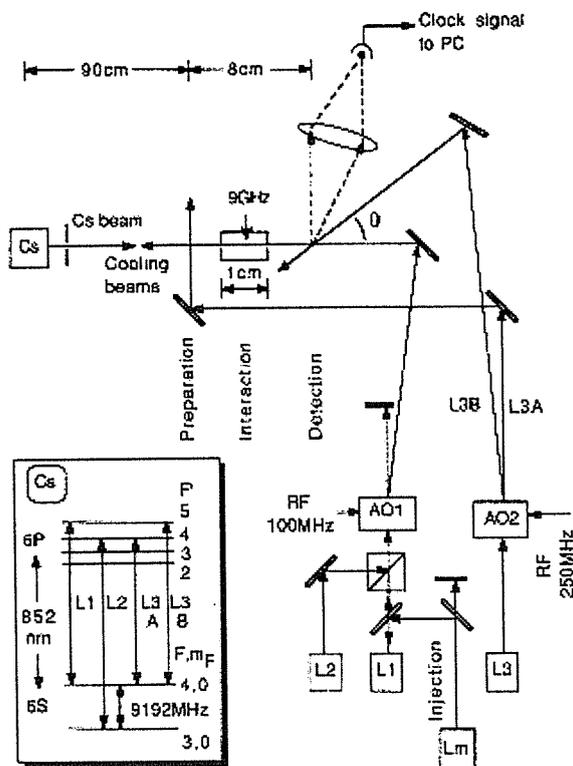


Fig. I-1-4. Schémas du montage expérimental et le diagramme des niveaux d'énergie de l'atome de césium.

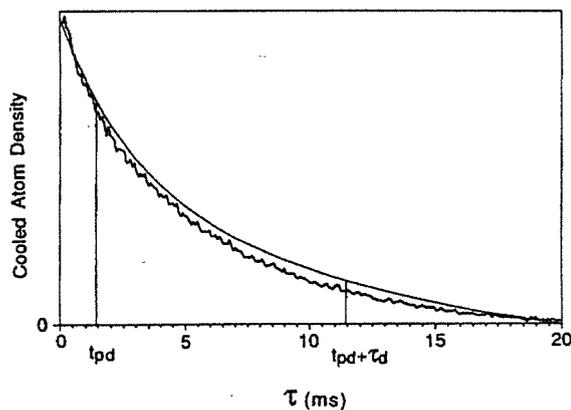


Fig. I-1-5. Décroissance de la densité d'atomes froids après une rampe de refroidissement.

La production par intermittence d'atomes froids nécessite un déroulement séquentiel de l'expérience. La figure I-1-6 montre la séquence temporelle d'acquisition du signal de l'horloge atomique avec jet atomique refroidi. La séquence commence avec une rampe de balayage linéaire appliquée à la fréquence de la diode de refroidissement et à celle de

repompage (L1 et L2). Cette rampe dure typiquement 7 ms et parcourt 350 MHz. A la fin de la rampe, la puissance RF appliquée sur le modulateur acousto-optique AO1 est remise à zéro, et les faisceaux de refroidissement et de repompage sont bloqués. La colonne d'atomes froids interagit alors avec le faisceau de préparation qui les pompe vers le niveau $F = 3$ du fondamental. La micro-onde est appliquée dans la cavité avec une fréquence donnée, qui remet une partie d'atome dans le sous-niveau $F=4, m_F=0$. Le champ micro-onde est appliqué continûment ou par intermittence pendant le transit d'un atome dans la cavité, ce qui permet une interaction du type de Rabi ou de Ramsey. La présence d'atomes dans ce sous-niveau est détectée par le faisceau de détection. La fluorescence est intégrée tout au long du passage de la colonne d'atomes froids. Toute la séquence est contrôlée par un PC équipé d'une carte CAD/CDA. A la fin de chaque séquence le signal est stocké et la fréquence de la micro-onde est incrémentée.

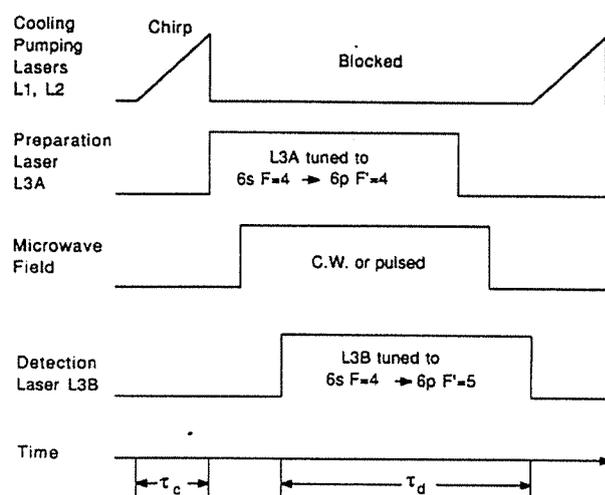


Fig. I-1-6. Séquence temporelle pour la production des atomes froids et la détection de la transition de l'horloge atomique.

α . Résultats obtenus avec des diodes laser en fonctionnement libre

Les franges de Ramsey avec un jet refroidi ont été observées en 1989 avec des diodes en fonctionnement libre. Par rapport à la figure I-1-4, la diode maître (L_m) n'existe pas. La diode L3 est stabilisée par un asservissement électrique sur un signal d'absorption saturée d'une cellule de césium. Pour l'interaction du type de Ramsey, chaque atome interagit deux fois avec le champ micro-onde en traversant la cavité. Les interactions sont du type $\pi/2 : \Omega \tau = \pi/2$, où Ω est la fréquence de Rabi et τ la durée de chaque interaction.

La figure I-1-7 montre un spectre expérimental (Fig. I-1-7. a) et un spectre calculé (Fig. I-1-7. b). Grâce au caractère monocinétique du jet, les franges sont clairement visibles, mais le contraste reste médiocre à cause de la distribution de vitesse résiduelle et du bruit de détection. Pour un jet thermique, seule la frange centrale est visible, les franges latérales sont lissées par le fait que les temps de transit des atomes avec des vitesses différentes sont différents.

Cette situation se compare facilement avec l'interférence produite par les fentes d'Young. Un faisceau mono-fréquence permet d'observer les franges diffracto-interférentielle avec un bon contraste, ce contraste diminue lorsque la largeur spectrale de la source augmente.

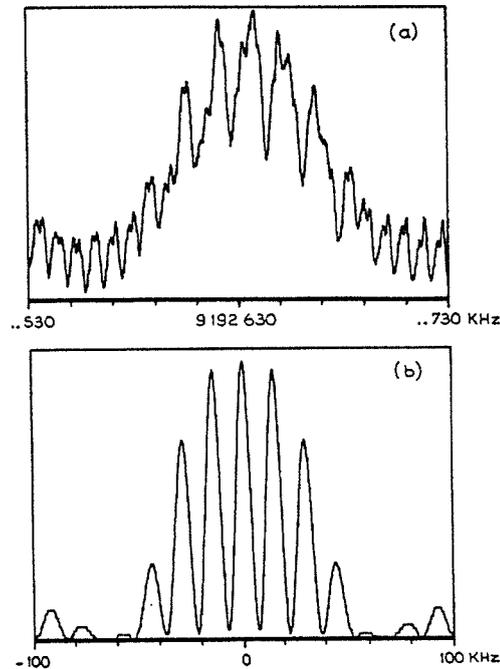


Fig. I-1-7. Franges de Ramsey obtenues avec des diodes laser en fonctionnement libre, (a) spectre expérimental, (b) spectre calculé.

β. Résultats obtenus avec des diodes laser stabilisées

En 1990, nous avons amélioré le dispositif expérimental en utilisant des diodes laser stabilisées par le couplage (feed-back) avec une cavité Fabry-Perot externe. Ce type de montage permet de stabiliser la fréquence d'une diode à moins de 100 kHz. Deux diodes stabilisées par feed-back sont utilisées, qui sont par rapport à la figure I-1-4, la diode de détection (L3) et la diode maître (Lm). Une partie de puissance de la diode maître à la sortie est injectée dans la diode de refroidissement (L1, diode STC) qui est une diode plus puissante. On obtient un faisceau stable de 30 mW.

La figure I-1-8 montre les spectres pour un jet ralenti à une vitesse de 50 m/s. Pour ces atomes le temps de transit (τ) dans la cavité est de 200 μ s. L'interaction du type Rabi (Fig. I-1-8.a) se réalise avec une excitation micro-onde continue et celle de Ramsey (Fig. I-1-8.b) avec une excitation micro-onde par intermittence. Chaque excitation dure 8 μ s (τ_{on}) avec un intervalle de 92 μ s (τ_{off}) entre deux excitations. Interactions à grand nombre d'excitations sont réalisées avec des séquences de micro-onde à τ_{on} fixé à 8 μ s mais à τ_{off} déterminé par la relation, $\tau_{on} + \tau_{off} = \tau/n$, où n est le nombre d'interactions.

Grâce au caractère monocinétique du jet, les franges sont observées avec une bonne visibilité sur un fond noir. La largeur du spectre de Rabi est déterminée par le temps de transit dans la cavité. Pour les spectres avec interactions multiples, la durée d'excitation micro-onde (τ_{on}) détermine l'enveloppe des franges, alors la durée totale d'interaction, $n(\tau_{on} + \tau_{off})$, détermine la largeur des franges. Un spectre détaillé des trois franges de Ramsey centrales est montré sur la figure I-1-9.a. On remarque que les franges ne sont pas tout à fait de forme sinusoïdale comme ce qui devrait être pour une interaction à deux impulsions. Cette déformation est due à la fuite du champ micro-onde de la cavité : avant de pénétrer dans la

cavité, les atomes interagissent avec le champ de fuite. On peut simuler cette situation et obtenir un spectre théorique (Fig.I-1-9.b) qui reproduit correctement le spectre expérimental.

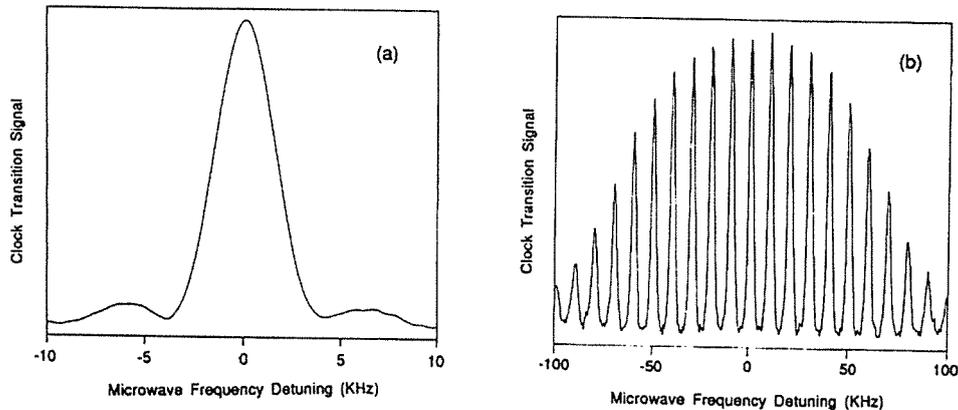


Fig. I-1-8. Spectres micro-onde obtenues avec des diodes stabilisées, (a) interaction Rabi et (b) interaction Ramsey.

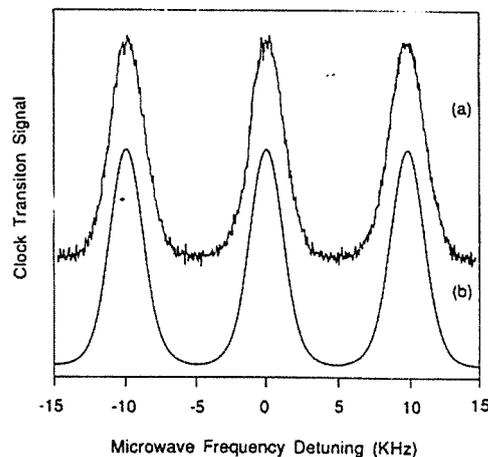


Fig. I-1-9. Franges de Ramsey, (a) spectre expérimental et (b) spectre calculé.

On peut augmenter le nombre d'interaction micro-onde pendant le temps de transit des atomes froids dans la cavité. La figure I-1-10 montre les spectres obtenus avec 3, 4, 6 et 8 créneaux micro-onde. On remarque que l'enveloppe du spectre reste stable, mais le nombre de franges diminue lorsque le nombre d'interaction augmente.

Il est intéressant de faire ici un parallélisme entre le système atomique à deux niveaux que nous étudions et une expérience de diffraction et d'interférence en Optique. L'interaction de Rabi se compare naturellement à la diffraction par une fente dont la figure observée sur un écran est un profil sinus cardinal. L'interaction de Ramsey produit des franges comparables à celles observées derrière les double fentes d'Young. Lorsque le nombre d'interaction augmente, on observe une évolution vers une figure de diffraction par un réseau. La différence dans notre expérience est que l'observable est un état interne atomique et que le déphasage se produit dans le temps.

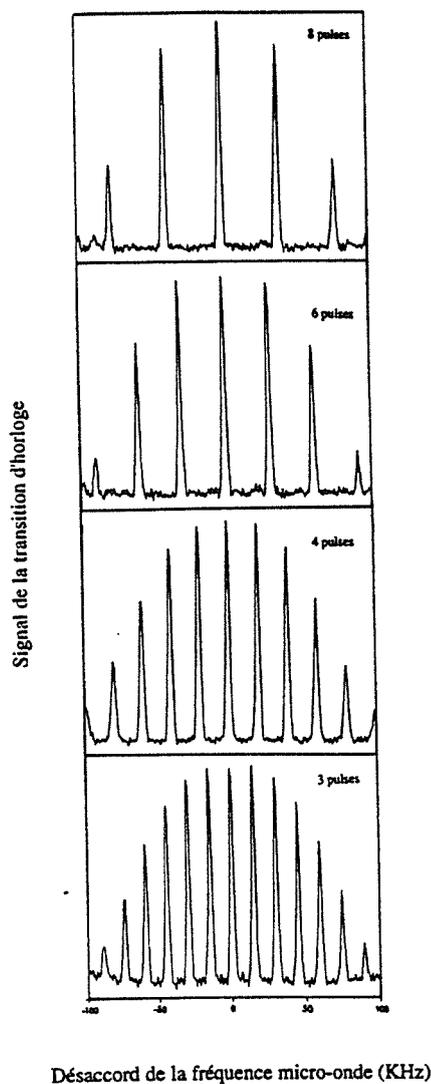


Fig. I-1-10. Spectres avec interactions micro-onde multi-impulsion

Le signal sur bruit du spectre montré dans la figure I-1-9.a est supérieur à 20 après une moyenne sur 4 passages. Alors il tombe à 4 lors qu'on utilise un jet ralenti à 20 m/s. Deux effets limitent la densité d'atomes froids dans un jet très lent : la diffusion transverse, et la chute libre sous la gravitation. Le nombre d'atomes traversant la cavité et détectés par le faisceau de détection diminue rapidement. Une collimation transverse est nécessaire pour reconcentrer le jet. Une autre solution est de travailler verticalement. C'est la fameuse configuration de la fontaine atomique, démontré, parmi d'autres, à l'Ecole Normale Supérieure de Paris par André Clairon et Christophe Salomon et leurs collaborateurs¹⁶.

Si on fixe la fréquence micro-onde à la résonance et varie son amplitude, on observe une variation du signal de l'horloge, c'est l'oscillation de Rabi. Pour un jet monocinétique cette oscillation est sinusoïdale à amplitude constante. Expérimentalement, on observe un amortissement de l'oscillation de Rabi (Fig. I-1-11). Cet amortissement est dû à l'inhomogénéité du champ micro-onde mais aussi à la distribution de vitesses résiduelles du

jet atomique. Un ajustement nous permet d'extraire la largeur de cette distribution, estimée à 5 m/s (FWHM), ce qui correspond à une température de 72 mK.

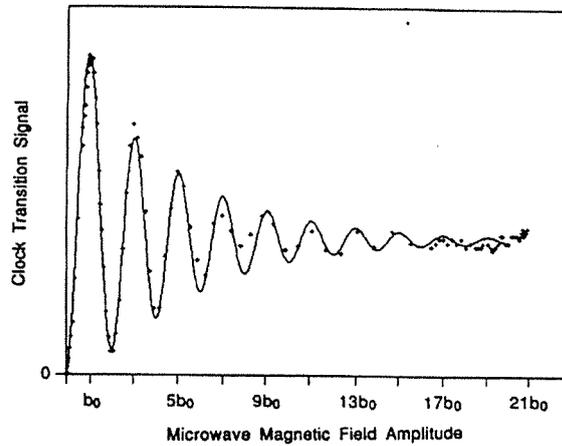


Fig. I-1-11. Observation de l'oscillation de Rabi.

I.1.3 Conclusion

En conclusion, notre expérience est l'une des expériences pionnières dans l'application des atomes refroidis par laser. Nous avons pu maîtriser l'utilisation des diodes laser, spécialement des diodes stabilisées, dans une expérience qui combine le refroidissement laser et l'horloge atomique à pompage optique. Nous avons pu aussi maîtriser le déroulement séquentiel de l'expérience. Les spectres obtenus sont parmi les premières franges de Ramsey avec une visibilité aussi proche de l'unité. Le rapport signal sur bruit du signal obtenu montre la faisabilité d'une horloge atomique à atomes froids. Un tel jet atomique peut être aussi intéressant pour des expériences de collision à atomes froids.

Il est évident que la configuration du jet horizontal sous pesanteur limite intrinsèquement l'utilisation des atomes très lents, donc l'accès aux temps d'interactions ultra-long et aux largeurs spectrales ultra-faible. La fontaine atomique est la solution idéale pour une horloge atomique à atomes refroidis. Le temps d'interaction aussi long que 0,25 s a été démontré dans une fontaine, ce qui correspond à une largeur de la frange centrale de 2,0 Hz¹⁶. Actuellement, les premiers résultats montrent d'ores et déjà les meilleures performances réalisées avec une horloge à fontaine atomique que celles obtenues avec l'horloge atomique classique¹⁷. Une stabilité deux fois meilleure que le standard à atomes de césium classique a été mesurée. Les incertitudes ont été estimées à inférieures à 10^{-15} permettant une précision de $2 \cdot 10^{-14}$ limitée par un problème technique (fuite de micro-onde de la cavité).

Références :

1. R. Frisch, « Experimenteller Nachweis des Einsteinschen Strahlungsrückstoßes », *Z. Phys.* **86**, 42 (1933).
2. Askin, « Atomic deflection by resonance-radiation pressure », *Phys. Rev. Lett.*, **25**, 1312 (1970).
3. J.L. Picqué and J.L. Vialle, « Atomic-beam deflection and broadening by recoils due to photon absorption or emission » *Opt. Commun.* **5**, 402 (1972).
4. R. Schieder, H. Walther and L. Wöste, « Atomic beam deflection by the light from a tunable dye laser », *Opt. Commun.* **5**, 337 (1972).
5. T.W. Hänsch and A.L. Schawlow, « Cooling of gas by laser radiation », *Opt. Commun.* **13**, 68 (1975).
6. J. Gordon and A. Ashkin, « Motion of atoms in a radiation trap », *Phys. Rev. A* **21**, 1606 (1980).
7. R. Cook, « Theory of resonance radiation pressure », *Phys. Rev. A* **22**, 1078 (1980).
8. V.S. Letokhov, V.G. Minogin, « Cooling and trapping of atoms and molecules by resonant laser field », *Opt. Commun.* **19**, 72 (1976).
9. V.I. Balykin, V.S. Letokhov, and V.I. Mushion, « Observation of the cooling of free sodium atoms in a resonance laser field with a scanning frequency », *LETP Lett.* **29**, 560 (1979).
10. William D. Phillips and Harold Metcalf, « Laser Deceleration of an Atomic Beam », *Phys. Rev. Lett.* **48**, 596 (1982).
11. John V. Prodan, William D. Phillips and Harold Metcalf, « Laser Production of a Very Slow Monoenergetic Atomic Beam », *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1149 (1982). Et William D. Phillips, John V. Prodan, and Harold J. Metcalf, « Laser cooling and electromagnetic trapping of neutral atoms », *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1751 (1985).
12. W. Ertmer, R. Blatt, J.L. Hall, and M. Zhu, « Laser Manipulation of Atomic Beam Velocities : Demonstration of Stopped Atoms and Velocity Reversal », *Phys. Rev. Lett.* **54**, 996 (1985).
13. R. Watts and C. Wieman, *Opt. Lett.*, **11**, 291 (1986).
14. Christophe Salomon et Jean Dalibard, « La température limite d'un jet atomique de césium ralenti par diode laser », *C. R. Acad. Sci. Paris*, t. **306**, Série II, 1319 (1988).
15. L.L. Lewis, F.L. Walls, D.J. Glaze, *J. Physique*, **42**, C8-241 (1981).
16. A. Clairon, C. Salomon, S. Guellati, and W.D. Phillips, « Ramsey Resonance in a Zacharias Fountain », *Europhys. Lett.* **16**, 165 (1991).
17. A. Clairon, P. Laurent, G. Santarelli, S. Ghezali, S. N. Lea, and M. Bahoura, « A Cesium Fountain Frequency Standard : Preliminary Results », *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **44**, 128 (1995).

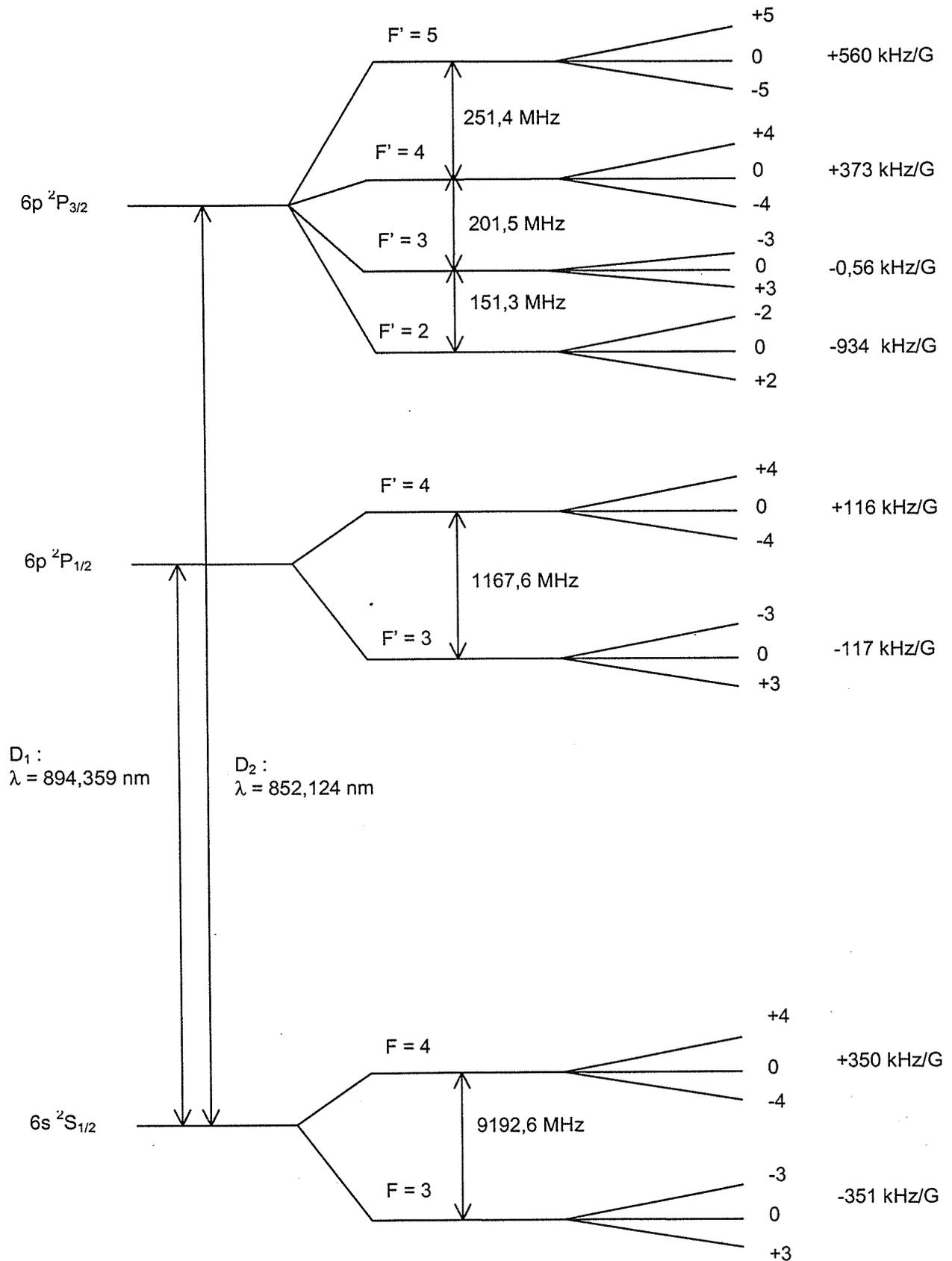
Nos publications sur ce travail :

1. J.-L. Picqué, A. Clairon, J. Yu et S. Guellati, « Le refroidissement laser d'atomes en métrologie des fréquences », *Ann. Phys. C1* **15**, 31 (1990).
2. J. Yu, S. Guellati, M.-C. Gagné, A. Clairon et J.-L. Picqué, « Observation de la résonance de l'horloge atomique sur des atomes de césium refroidis par laser », *Ann. Phys. C2* **16**, 147 (1991).
3. J. Yu, S. Guellati, M.-C. Gagné, A. Clairon and J.-L. Picqué, « Microwave resonance on a laser-cooled cesium atomic beam: prospects for a cesium frequency standard », *Opt. Commun.* **82**, 27 (1991).

Thèse soutenue sur ce travail dans notre équipe:

Saïda Guellati, « Atomes refroidis par laser : spectroscopie à haute résolution en jet et en fontaine atomiques sur la transition de l'horloge à césium », Université Paris-Sud, Orsay (1992).

Annexe du Chapitre I.1 : Niveaux d'énergie des raies D₁ et D₂ du césium avec leur structure hyperfine et leur déplacement Zeeman.



Chapitre I.2

Mélasse Optique à Une Dimension : Refroidissement Sub-Doppler

I.2.1 Découverte d'un nouveau mécanisme de refroidissement

I.2.1.a Température sub-Doppler dans les mélasses optiques

Prédit par Hänsch et Schawlow en 1972, le confinement d'atomes neutres par laser a été démontré en 1985 par Steven Chu et ses collaborateurs avec l'atome de sodium¹. Le montage a été baptisé « mélasse optique ». La température limite dans cette première mélasse optique a été mesurée à environ 240 μK correspondant à une vitesse quadratique moyenne de 60 cm/s. Ces données conforment bien à la limite Doppler du refroidissement. Mais trois ans plus tard, l'équipe dirigée par William D. Phillips, grâce à la technique de temps de vol, a pu mesurer une température de 43 μK dans une mélasse optique à sodium, bien en dessous de la limite Doppler². Cette température « anormalement » basse a été ensuite confirmée par d'autres équipes travaillant dans une mélasse optique à césium³ ou à sodium⁴. Un nouveau mécanisme de refroidissement doit donc être considéré pour interpréter la température sub-Doppler.

Un pas décisif a été franchi en juillet 1988 à Paris, lorsque pendant la Onzième Conférence Internationale en Physique Atomique, deux équipes, Jean Dalibard et Claude Cohen-Tannoudji³ à l'Ecole Normale Supérieure de Paris, Steven Chu et ses collaborateurs⁴ à Stanford University, ont proposé simultanément un nouveau modèle de refroidissement laser. Bien que les formes des deux propositions diffèrent légèrement, l'idée essentielle est la même : Dans une mélasse optique, la polarisation du champ laser change d'un point à l'autre. Pour un ensemble d'atomes en mouvement, ce gradient de polarisation induit une modulation des niveaux atomiques habillés. De plus la probabilité de pompage optique parmi les sous-niveau Zeeman est aussi modulée. Le temps de pompage $\tau_p = \frac{1}{\Gamma}$ peut être très long devant

la durée de vie radiative du niveau excité $\tau_R = \frac{1}{\Gamma}$. L'évolution du degré de liberté interne d'un atome est donc en retard par rapport à son mouvement externe. Le mouvement de l'atome n'est pas adiabatique. Le pompage optique peut être accompagné d'une dissipation d'une quantité énergie du mouvement externe, donc conduire à un refroidissement.

I.2.1.b L'effet Sysiphe

Dans un article publié au J.O.S.A.B en 1998⁵, Jean Dalibard et Claude Cohen-Tannoudji ont analysé deux configurations de gradient de polarisation : polarisations linéaires orthogonales (lin. \perp lin.) et polarisations circulaires orthogonales ($\sigma^+ - \sigma^-$). La première configuration est illustrée par la figure I-2-1 : deux faisceaux laser de polarisations linéaires et mutuellement perpendiculaires se propagent dans les sens opposés, le champ total a une polarisation qui varie sur l'échelle de la longueur d'onde. Il s'agit ici d'un gradient de l'ellipticité.

Considérons le mouvement d'un atome possédant une transition du type $J=1/2 \rightarrow J'=3/2$ dont les coefficients Clebsch-Gordan sont donnés dans la figure I-2-2. Au départ, à $z = \lambda/8$, il se trouve dans le sous-niveau $g_{-1/2}$ (Fig. I-2-3). Si les faisceaux laser sont avec un grand désaccord rouge et de faible intensité, le taux de pompage optique est faible et l'atome se déplace en restant dans ce sous-niveau. Il lui faut arriver, après une montée de la colline de potentiel, au point où la polarisation du champ laser devient σ_+ ($z = 3\lambda/8$) pour être pompé vers le sous-niveau $g_{+1/2}$. En partant de la vallée de potentiel, l'atome remonte vers le sommet avant d'être pompé vers l'autre sous-niveau. Donc en moyenne l'atome monte davantage la colline qu'il ne la descend.

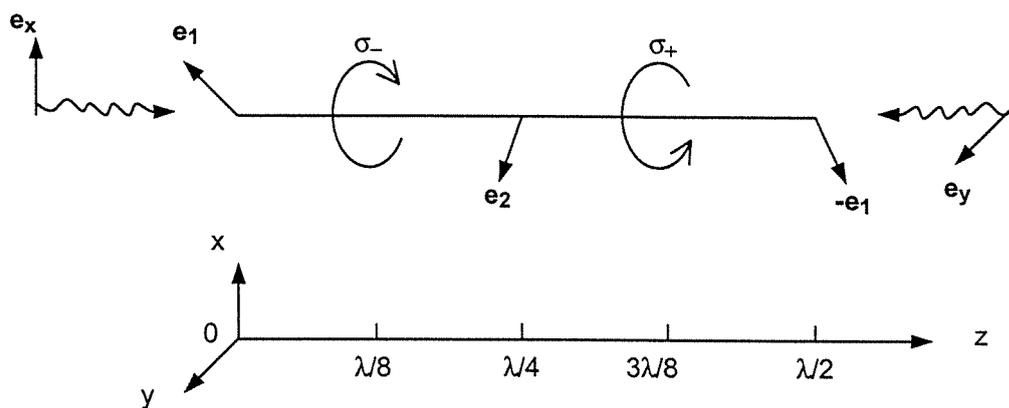


Fig. I-2-1. Gradient de polarisation dans un champ formé par deux faisceaux laser de polarisations linéaires et mutuellement orthogonales selon la réf. 5.

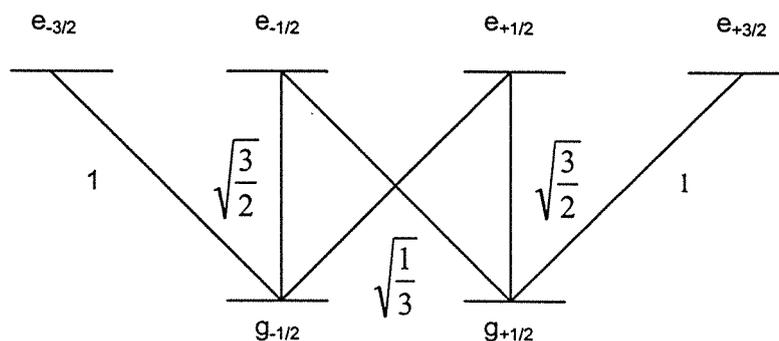


Fig. I-2-2. Coefficients Clebsch-Gordan pour la transition $J=1/2 \rightarrow J'=3/2$.

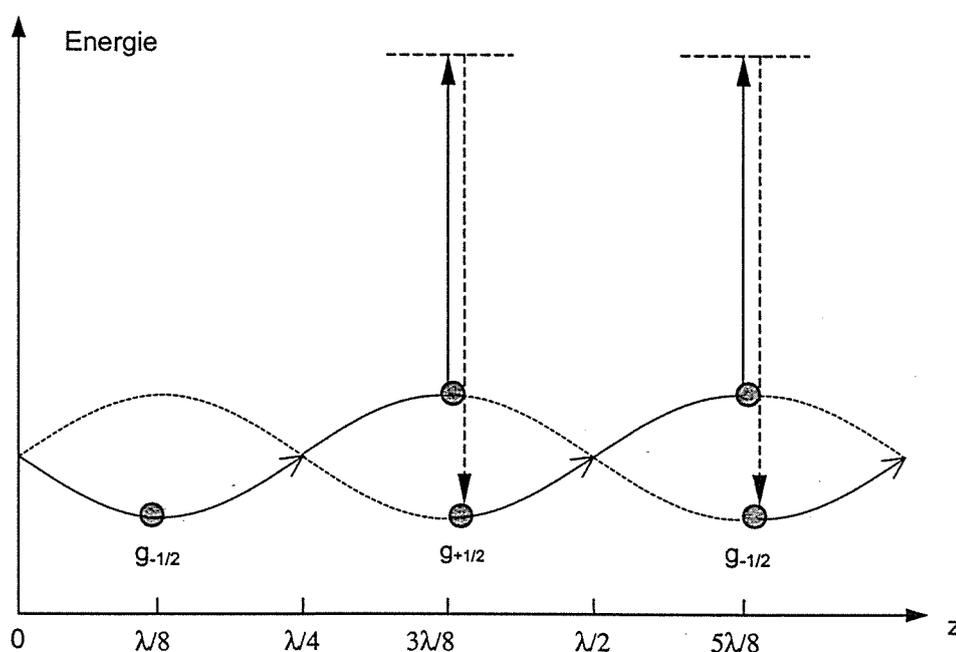


Fig. I-2-3. Evolution d'un atome dans gradient de polarisation : modèle du refroidissement Sisyphé selon la réf. 5.

Chaque pompage au sommet de la colline de potentiel dissipe une quantité d'énergie du mouvement externe de l'atome par une diffusion de Raman anti-Stokes spontanée. L'atome est donc ralenti. Ce processus continue tant que l'énergie cinétique de l'atome est plus grande que la modulation du déplacement lumineux. Le mythe grecque de Sisyphe a été empruntée pour baptiser ce nouveau mécanisme de refroidissement.

Les calculs des ordres de grandeurs montrent les principales caractéristiques de cette nouvelle force de refroidissement par rapport au refroidissement Doppler. D'abord, la vitesse de capture est liée au temps de pompage optique : $kv \sim \frac{1}{\tau_p} = \Gamma'$. Elle est proportionnelle à

l'intensité du laser, et peut être très petite à faible intensité laser. Pour le refroidissement Doppler, la vitesse de capture est déterminée par la durée de vie du niveau excité : $kv \sim \frac{1}{\tau_R} = \Gamma$, qui est une constante. Le coefficient de friction α ($F = -\alpha v$) peut être beaucoup

plus grand pour le refroidissement Sisyphe : $\alpha \sim -\hbar k^2 \frac{\delta}{\Gamma}$, que pour le refroidissement Doppler : $\alpha \sim -\hbar k^2$, si on prend δ , le désaccord, plus grand que Γ . Quant à la température limite, elle est liée au déplacement lumineux $\Delta' \sim \Omega^2/\delta$, où Ω est la fréquence de Rabi. On voit qu'elle pourrait être aussi basse que l'intensité laser est faible et que le désaccord est grand. Avec un calcul quantique ⁶, on peut montrer que la valeur de la température limite est équivalente à quelques vitesses de recul de l'atome lorsqu'il absorbe un photon. Pour l'atome de césium cette vitesse de recul est de 0,35 cm/s, ce qui correspond à une température de l'ordre 0,1 μ K.

I.2.1.c Refroidissement dans un champ laser à polarisation tournant

La deuxième configuration que Jean Dalibard et Claude Cohen-Tannoudji ont considérée est celle de $\sigma^+ - \sigma^-$. Deux faisceaux laser se propageant en sens contraires sont polarisés circulairement mais dans les sens de rotations opposées. Le champ total a une polarisation linéaire dont la direction tourne périodiquement sur une échelle de la longueur d'onde (Fig. I-2-4).

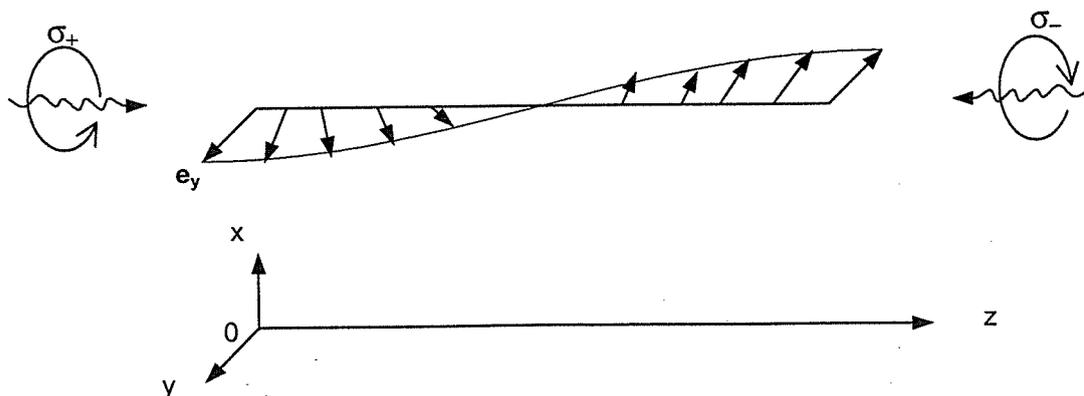


Fig. I-2-4. Rotation de la polarisation dans un champ formé par deux faisceaux laser de polarisations $\sigma^+ - \sigma^-$ selon la réf. 5.

Contrairement à l'effet Sisyphe, il n'y a pas ici de modulation des déplacements lumineux des sous niveaux du fondamental. Par contre, la rotation de la polarisation implique pour un

atome en déplacement, une dépendance en z de sa fonction d'onde. Ce gradient de fonction d'onde induit, même pour une très faible vitesse de l'atome, une orientation atomique selon l'axe Oz . Cette orientation conduit à des probabilités d'absorption différentes pour les deux ondes se propageant dans les sens contraires, ce qui résulte en une pression de radiation non nulle par conséquent en une force de friction hautement sensible à la vitesse de l'atome.

Pour illustrer ce nouveau mécanisme de refroidissement, Jean Dalibard et Claude Cohen-Tannoudji ont considéré une transition du type $J=1 \rightarrow J'=2$ dont les coefficients Clebsch-Gordan sont donnés en figure I-2-5.

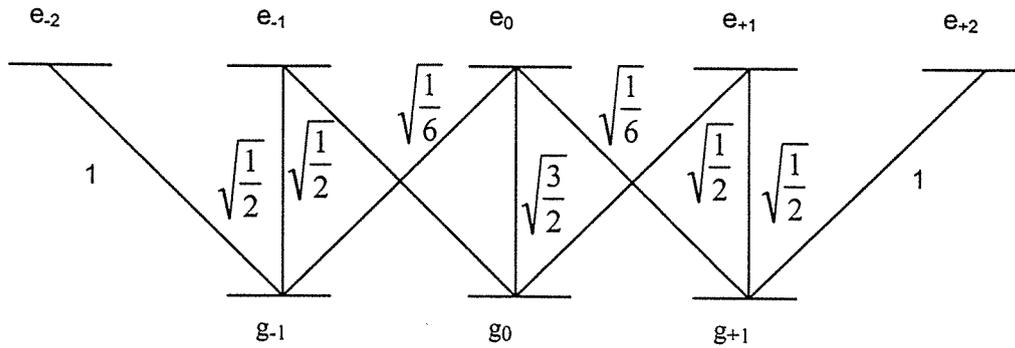


Fig. I-2-5. Coefficients Clebsch-Gordan pour la transition $J=1 \rightarrow J'=2$.

Considérons d'abord l'atome au repos à $z=0$ où la polarisation laser est de π selon l'axe Oy . Les différents coefficients Clebsch-Gordan conduisent à l'état stationnaire du pompage optique, une population plus importante dans le sous niveau $|g_0\rangle_y$, et en même temps un déplacement lumineux plus grand dans cet état que dans les deux états $|g_{\pm 1}\rangle_y$. En effet les populations stationnaires dans les sous niveaux $|g_0\rangle_y$, $|g_{+1}\rangle_y$ et $|g_{-1}\rangle_y$ sont respectivement $9/17$, $4/17$ et $4/17$, et les déplacements lumineux y sont Δ'_0 , $\frac{3}{4}\Delta'_0$ et $\frac{3}{4}\Delta'_0$ (Fig. I-2-6).

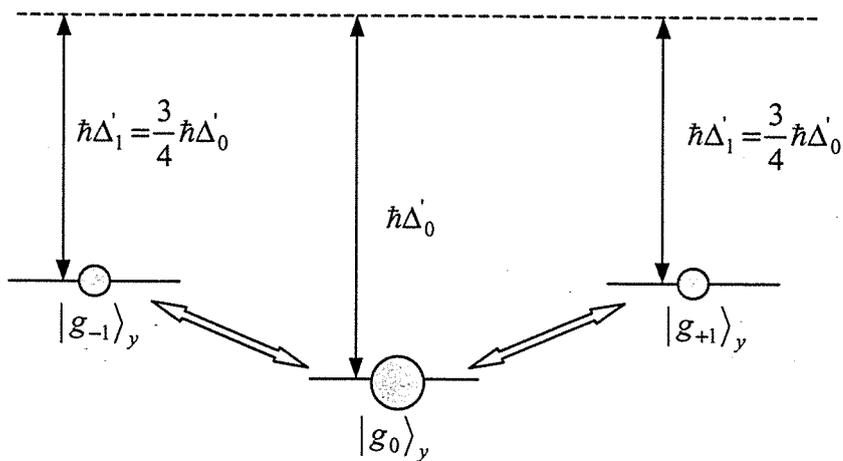


Fig. I-2-6. Populations et déplacements lumineux en état stationnaire. Les doubles flèches montrent le couplage induit par le champ magnétique inertiel dans un champ à polarisation tournant, selon la réf. 5.

Maintenant, considérons l'atome se déplaçant sur l'axe Oz avec une vitesse v : $z = vt$. Dans le référentiel du repos de l'atome, celui-ci voit la polarisation du champ tourne autour de l'axe Oz et fait un angle $\phi = -kz = -kvt$ par rapport à l'axe Oy à l'instant t . Il est donc pratique d'introduire un système de référence qui se déplace avec l'atome et qui tourne avec la polarisation du champ. Dans ce système de référence la polarisation du champ est linéaire dans une direction fixe. Mais selon le théorème de Larmor, un champ magnétique inertiel est apparu, conséquence de la rotation du système de référence. Ce champ magnétique fictif est parallèle à l'axe de rotation (Oz) et a une amplitude qui correspond à une fréquence de Larmor égale à la vitesse de rotation : $k\nu$. Un terme doit donc être ajouté dans l'Hamiltonien décrivant l'interaction entre l'atome et le champ laser de polarisation linéaire. Ce terme correspond à la contribution du champ magnétique inertiel : $V_{\text{rot}} = k\nu J_z$. Il est à remarquer que cet opérateur est non diagonal dans la base des états propres, il introduit donc un couplage entre les états $|g_0\rangle_y$, $|g_{+1}\rangle_y$ et $|g_{-1}\rangle_y$, qui sont les états propres d'un atome au repos.

Dans leur papier ⁵, Jean Dalibard et Claude Cohen-Tannoudji montrent que ce terme de couplage induit une orientation dans l'état fondamental selon l'axe Oz, qui se traduit par une valeur moyenne de J_z non nulle : $\langle J_z \rangle = \frac{40 \hbar k \nu}{17 \Delta_0}$ proportionnelle à la vitesse de l'atome. Cette

orientation signifie aussi une différence de population dans les états $|g_{+1}\rangle_z$ et $|g_{-1}\rangle_z$:

$$\Pi_{+1} - \Pi_{-1} = \frac{40 k \nu}{17 \Delta_0}. \text{ Pour un désaccord négatif, } \Delta_0 \text{ est négatif, ce qui conduit à } \Pi_{-1} > \Pi_{+1}$$

pour une vitesse positive. Selon les coefficients de Clebsch-Gordan, un atome se trouvant dans l'état $|g_{-1}\rangle_z$ a 6 fois plus de chance d'absorber un photon σ^- qu'un photon σ^+ . Donc le processus prépondérant est celui d'absorption des photons à sens de propagation opposé à la vitesse de l'atome, ce qui conduit à une diminution de celle-ci. Le même raisonnement s'applique à un atome à vitesse négative. On remarque que ce mécanisme de refroidissement se distingue du refroidissement Doppler par ce qu'il est sensible à une faible vitesse : $k\nu \sim \Delta_0'$ tandis que le refroidissement Doppler a une capture de $k\nu \sim \Gamma$. A faible intensité ou à grand désaccord, $\Delta_0' < \Gamma$, comme l'effet Sisyphé, le nouveau mécanisme de refroidissement discuté ici peut avoir une force plus grande que le refroidissement Doppler, efficace sur une plage de vitesse plus petite. Un calcul de l'ordre de grandeur montre la forme de la force de friction :

$$F \sim \hbar k^2 \frac{\Gamma'}{\Delta} \nu, \text{ donc le coefficient de friction s'écrit : } \alpha \sim -\hbar k^2 \frac{\Gamma'}{\Delta} \sim -\hbar k^2 \frac{\Gamma}{\delta}. \text{ On remarque}$$

que par rapport à l'effet Sisyphé, le refroidissement $\sigma^+ - \sigma^-$ a un coefficient de friction plus faible pour le cas d'un grand désaccord, puisque l'effet Sisyphé a un coefficient de friction proportionnel à δ/Γ . Mais on peut montrer que dans ce cas-là, le coefficient de diffusion est également plus faible pour la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$. Donc les deux nouveaux mécanismes de refroidissement atteignent la même température limite.⁵

1.2.2 Contribution de l'équipe d'atomes froids au Laboratoire Aimé Cotton : Etude systématique des mélasses optiques sub-Doppler à une dimension

En 1991, notre équipe d'atomes froids au Laboratoire Aimé Cotton a connu un changement important : Jean-Louis Picqué appelé par sa nouvelle fonction quitte le laboratoire et Pierre Pillet est venu nous rejoindre pour prendre la responsabilité des activités de notre équipe. Nous lançons la conception et la réalisation d'un nouvel appareil de jet atomique destiné à un piège opto-magnétique à deux dimensions (entonnoir à atomes). En attendant, nous modifions

le montage que nous avons utilisé pour le ralentissement longitudinal et l'observation des franges de Ramsey pour réaliser une mélasse optique à une dimension sur un jet atomique de césium. Le but de cette expérience est d'appliquer la théorie des nouveaux mécanismes de refroidissement à l'atome de césium sur les deux types de transitions : $F=4 \rightarrow F'=5$ et $F=3 \rightarrow F'=2$. Nous avons aussi possibilité de jouer avec le champ magnétique pour observer de divers effets induits par celui-ci.

I.2.2.a Montage expérimental

Une zone de mélasse optique à une dimension est formée par deux faisceaux laser se propageant dans les sens opposés (Fig. I-2-7) à 8 cm du four.

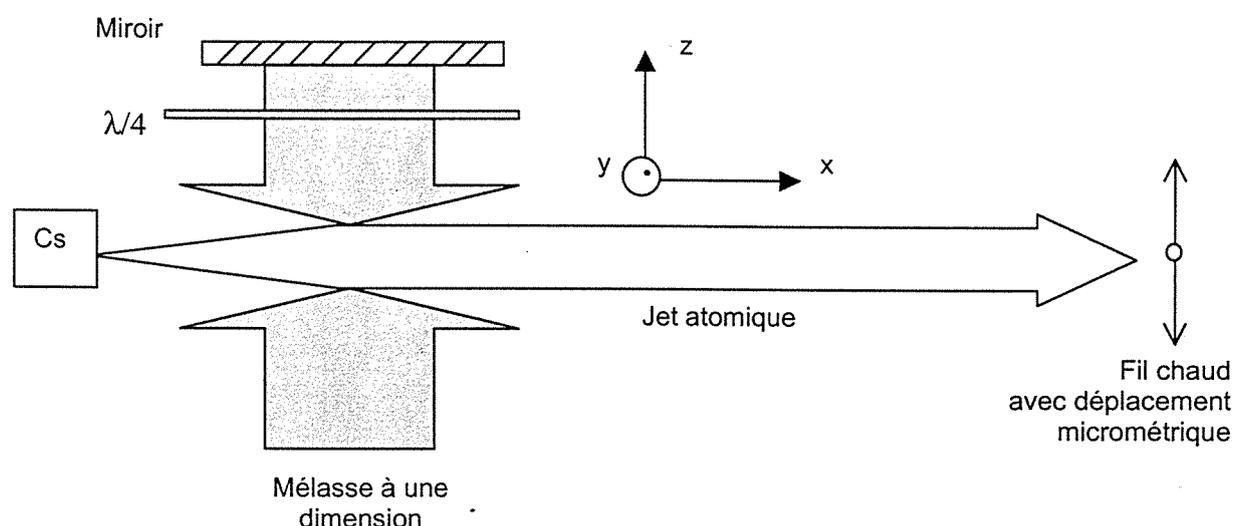


Fig. I-2-7. Montage expérimental pour la mélasse à une dimension.

La zone de la mélasse est entourée des trois paires de bobines de Helmholtz (invisibles sur la figure).

Les atomes sortent du four et entrent dans la zone de mélasse optique. Leur mouvement transverse est amorti par la mélasse. On mesure le profil du jet atomique à l'aide d'un fil chaud de diamètre $100 \mu\text{m}$ situé à $1,2 \text{ m}$ de la mélasse. La zone de mélasse optique est entourée des trois paires de bobines Helmholtz permettant une compensation du champ magnétique terrestre et fournissant un champ magnétique uniforme dans la zone de mélasse.

Les faisceaux de la mélasse optique sont fournis par une diode de chez STC, qui délivre 40 mW de puissance. Sa fréquence est asservie par injection sur une diode HITACHI qui est de son tour stabilisée par couplage avec une cavité Fabry-Perot externe. On obtient une largeur spectrale inférieure à 100 kHz . Une cellule de césium est utilisée pour accorder et stabiliser à long terme la fréquence des diodes. Avec le signal d'absorption saturée, on peut accorder le laser de mélasse sur la transition hyperfine $F=4 \rightarrow F'=5$ ou $F=3 \rightarrow F'=2$. A la sortie de la diode STC, le faisceau est collimaté par un objectif de microscope, et élargi en dimension horizontale par un télescope cylindrique. Au niveau de la mélasse, le faisceau a une section de $35 \times 7 \text{ mm}^2$ et une puissance de 15 mW est disponible au maximum. Dans nos expériences nous utilisons typiquement une intensité 4 mW/cm^2 et un désaccord de l'ordre de $\Gamma : \delta \sim 2\pi \times 5 \text{ MHz}$. Dans ces conditions le paramètre de saturation s est de $0,7$. Etant donnée la distribution thermique de la vitesse longitudinale du jet atomique (vitesse moyenne 260 m/s), le temps de transit moyen dans la mélasse est de $135 \mu\text{s}$. Un miroir plan est utilisé pour

réfléchir le faisceau sur lui-même et une lame de phase $\lambda/4$ pour tourner la polarisation du faisceau de retour.

Un deuxième faisceau laser est superposé sur le faisceau de mélasse. Il est accordé sur la transition $F=3 \rightarrow F'=4$ ou $F=4 \rightarrow F'=4$ pour le faisceau mélasse accordé sur $F=4 \rightarrow F'=5$ ou $F=3 \rightarrow F'=2$ respectivement. Son rôle est premièrement de regrouper toute la population atomique dans le niveau hyperfin $F=4$ (ou $F=5$), et deuxièmement de repomper des atomes vers le niveau $F=4$ (ou $F=5$) pendant le temps de transit dans la mélasse.

I.2.2.b Comparaison des mélasses sub-Doppler de différentes configurations et pour les deux types de transitions : $J \rightarrow J+1$ et $J \rightarrow J-1$

La figure I-2-8 montre les profils du jet atomique détecté par le fil chaud lorsqu'on modifie la propriété de la mélasse optique. Les cinq courbes de la colonne gauche (b, c, d, e, f) correspondent à la transition $F=4 \rightarrow F'=5$ et les quatre courbes de la colonne droite (g, h, i, j) à la transition $F=3 \rightarrow F'=2$.

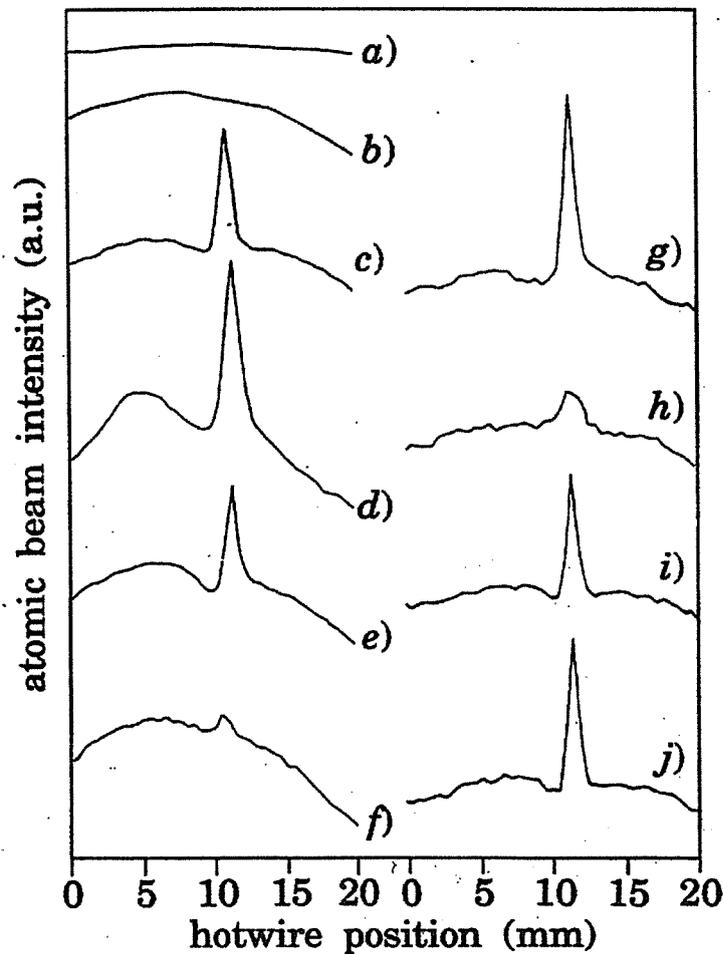


Figure I-2-8. Profils du jet atomique obtenus avec une mélasse optique en différentes configurations (pour les détails voir le texte).

La courbe a) donne le profil du jet atomique sans laser, qui est quasiment plat sur la plage d'analyse par le fil chaud.

La courbe b) est obtenu avec une mélasse Doppler avec la même polarisation pour les deux faisceaux formant la mélasse. On observe un effet de collimation sur un pic large. On vérifie que le profil ne change pas d'une façon significative pour une onde stationnaire de polarisation linéaire ou circulaire. La largeur du pic permet d'estimer la température associée au mouvement transversal à 30 mK. Cette température est très supérieure à la limite Doppler. En effet le temps d'amortissement dans une mélasse Doppler avec les paramètres utilisés est estimé à 500 μ s, ce qui est beaucoup plus grand que le temps de transit. Donc l'équilibre n'est pas atteint dans la mélasse Doppler. Le maximum du profil est décalé par rapport à l'axe du jet atomique, ce qui est dû au déséquilibre entre les deux faisceaux de la mélasse. On remarque aussi que pour la transition $F=3 \rightarrow F'=2$ la mélasse Doppler ne fonctionne pas ; La raison est que pour les transitions du type $J \rightarrow J-1$, les sous-niveaux $M_J = \pm J$ dans le fondamental sont des états piège. Dans la mélasse toute la population atomique est pompée optiquement dans ces états et perd l'interaction avec le champ laser.

Les autres courbes données sur la figure I-2-8 présentent un pic plus fin centré sur l'axe de propagation du jet atomique. On peut estimer leur température dans la dimension transverse à 100 μ K, inférieure à la limite Doppler. Ce sont donc des configurations du refroidissement sub-Doppler. De plus avec un désaccord plus grand, nous avons pu observer des pics qui correspondent à une température transverse de 20 μ K.

Les courbes c) et g) correspondent à la mélasse Sisyphe : les deux faisceaux de mélasse sont linéairement polarisés dans les directions orthogonales. On obtient pour les deux transitions un pic fin au centre du profil sans laser. Une grande différence est que pour la transition $F=4 \rightarrow F'=5$, un désaccord rouge est utilisé comme prédit par la théorie de Jean Dalibard et Claude Cohen-Tannoudji. Mais pour la transition $F=3 \rightarrow F'=2$, un désaccord bleu permet un refroidissement. Ce résultat peut être facilement interprété en appliquant le modèle de l'effet Sisyphe à une transition $J \rightarrow J-1$. On remarque notamment contrairement à la transition du type $J \rightarrow J+1$, pour cette transition le taux de pompage maximal se produit en même temps que le maximum du déplacement lumineux. Si on veut que l'atome soit pompé préférentiellement au voisinage du sommet de la colline de potentiel, un désaccord bleu est nécessaire. Un modèle du type Sisyphe pour la transition $J=1/2 \rightarrow J'=0$ est illustré sur la figure I-2-9, avec un désaccord bleu. On remarque aussi pour la transition $F=4 \rightarrow F'=5$, la mélasse sub-Doppler est superposée sur la mélasse Doppler.

Les effets d'une mélasse $\sigma^+ - \sigma^-$ sont montrés par les courbes d) et h). Comme prédit par la théorie, cette mélasse marche bien pour la transition $F=4 \rightarrow F'=5$. Mais pour la transition $F=3 \rightarrow F'=2$, elle produit un petit effet. On peut expliquer cette différence par les deux niveaux piège $M_J = \pm J$ dans le fondamental.

Les courbes e), f), i) et j) sont obtenues dans une onde stationnaire avec application d'un champ magnétique faible (~ 1 Gauss). L'onde stationnaire est de polarisation σ^+ dans e) et i) et linéaire dans f) et j). Le champ magnétique est appliqué toujours perpendiculaire à l'axe quantification défini par la polarisation laser. Dans ces configurations, les populations dans les sous-niveaux Zeeman dépendent de la compétition entre le pompage optique induit par le champ laser et la précession de Larmor autour du champ magnétique. Si le champ magnétique est suffisamment faible, un régime d'alternance de dominance entre le pompage optique et la précession Larmor peut être instauré : au voisinage des ventres de l'onde stationnaire les atomes sont optiquement pompés vers le sous-niveau le plus probable, et ils s'y restent adiabatiquement en suivant le niveau d'énergie jusqu'au moment où ils arrivent au voisinage

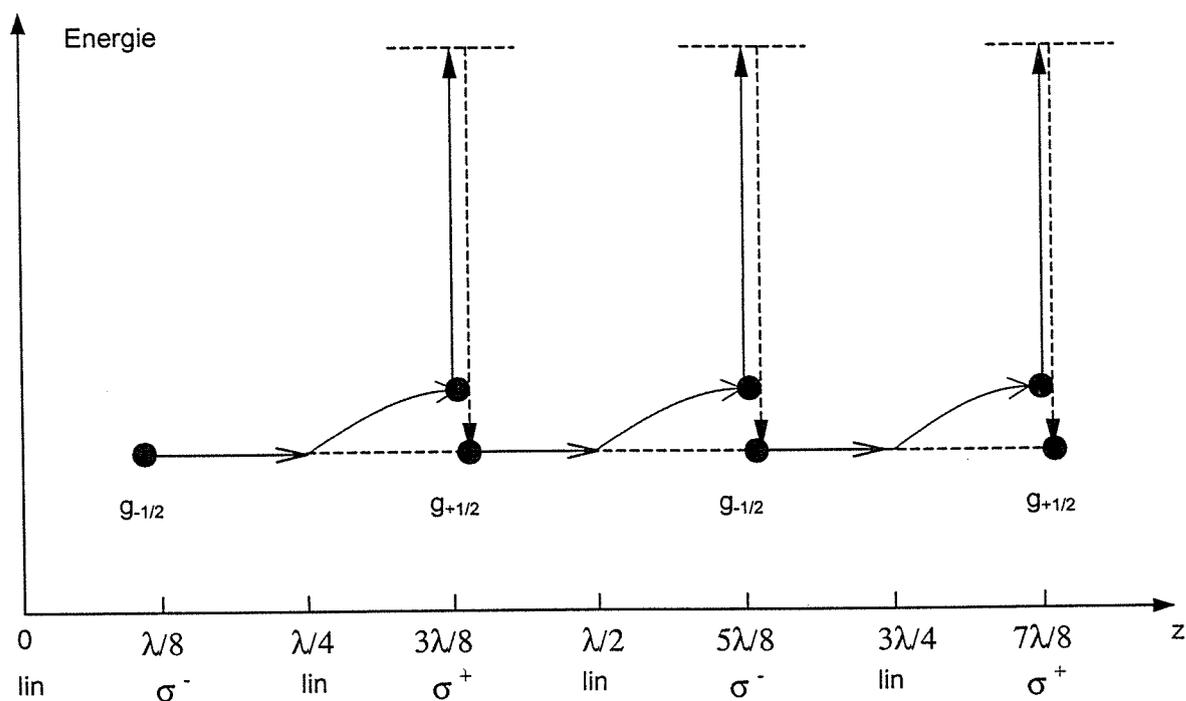


Fig. I-2-9. Modèle Sisyphes pour une transition $J=1/2 \rightarrow J' = 0$ avec un désaccord bleu.

des nœuds, la population est alors mélangée par le champ magnétique. Pour qu'il y ait du refroidissement, il suffit de choisir un désaccord adéquat pour que le pompage optique soit accompagné d'une dissipation d'énergie. Ce principe de refroidissement est illustré sur la figure I-2-10 avec une transition $J=1/2 \rightarrow J' = 3/2$ dans un champ à polarisation σ^+ en présence d'un champ magnétique faible.

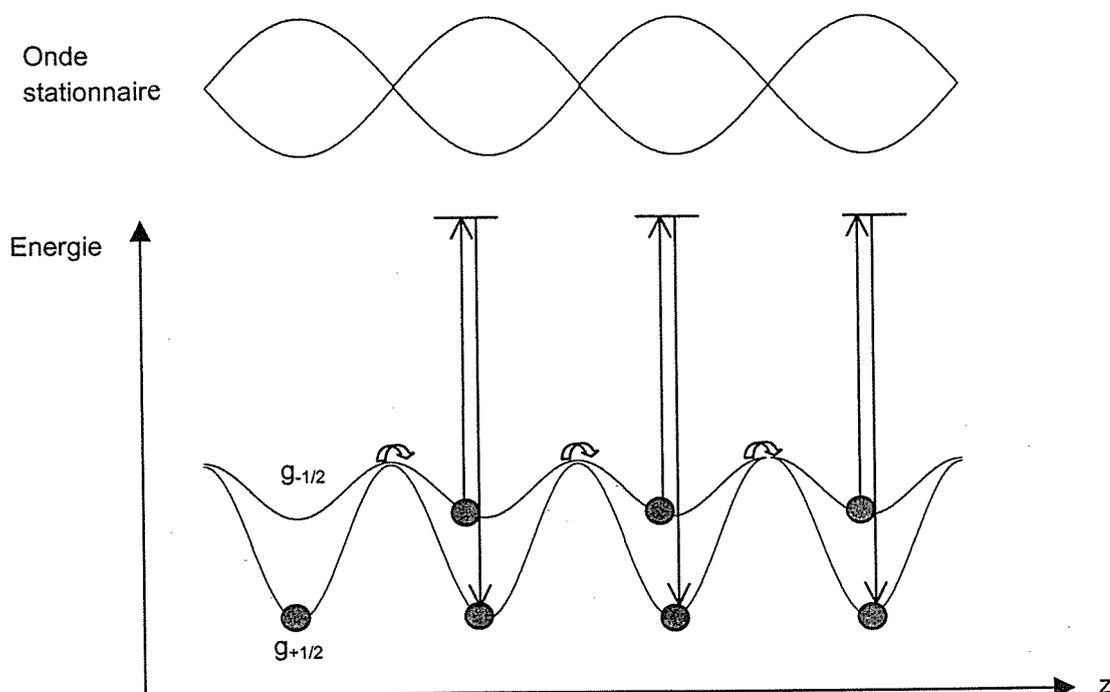


Fig. I-2-10. Refroidissement Sisyphes dans une onde stationnaire σ^+ en présence de champ magnétique faible pour une transition $J=1/2 \rightarrow J' = 3/2$.

Nous remarquons néanmoins que la courbe f) dans la figure I-2-8 montre un effet de refroidissement relativement faible. On peut expliquer cette anomalie par le fait que dans une onde de polarisation linéaire pour la transition $F=4 \rightarrow F'=5$, la population atomique dans le niveau fondamental n'est que faiblement polarisée par le pompage optique dans le sous-niveau $m_F=0$. Alors pour les autres trois cas e), i) et j), la polarisation de la population est plus efficace soit grâce à la polarisation de l'onde (σ^+) soit grâce à la présence des niveaux de piège.

I.2.2.c Mélasses en dérive induites par un champ magnétique statique

α . Configuration $\sigma^+ - \sigma^-$

Selon les considérations de Jean Dalibard et Claude Cohen-Tannoudji⁵, le mouvement d'un atome dans un champ composé des deux ondes de polarisation σ^+ et σ^- induit un terme dans l'Hamiltonien: $V_{\text{rot}} = kvJ_z$, qui correspond à la contribution d'un champ magnétique inertiel. Maintenant si un champ magnétique (B) est appliqué selon l'axe oz , l'Hamiltonien d'interaction s'écrit: $H = -DE + (kv + \Omega_B)J$, ou $\Omega_B = -g\mu B/\hbar$ avec g le facteur de Landé et μ le magnéton de Bohr. Il apparaît une vitesse particulière $v_M = -\Omega_B/k$ autour de laquelle se forme une mélasse sub-Doppler. Cette mélasse dérive donc avec une vitesse moyenne non nulle. Pour l'atome de césium le déplacement Zeeman a une valeur de $\Omega_B/B = +2\pi \times 350$ kHz/Gauss pour le niveau $F=4$ et $-2\pi \times 351$ kHz/Gauss pour le niveau $F=3$. On peut calculer la vitesse de dérive pour les deux transitions à $\mp 29,8$ cm s⁻¹ G⁻¹.

Expérimentalement la dérive des mélasses a été observée avec un désaccord de -6 MHz pour la transition $F=4 \rightarrow F'=5$ et 10 MHz pour la transition $F=3 \rightarrow F'=2$. La figure I-2-11 montre les mesures de la vitesse de drive en fonction du champ magnétique. Une pente moyenne est mesurée à ∓ 28 cm/s/G conformément au calcul théorique. Nos résultats confirment également l'observation sur une mélasse à rubidium faite par l'équipe de H. Metcalf à Stony Brook.⁷

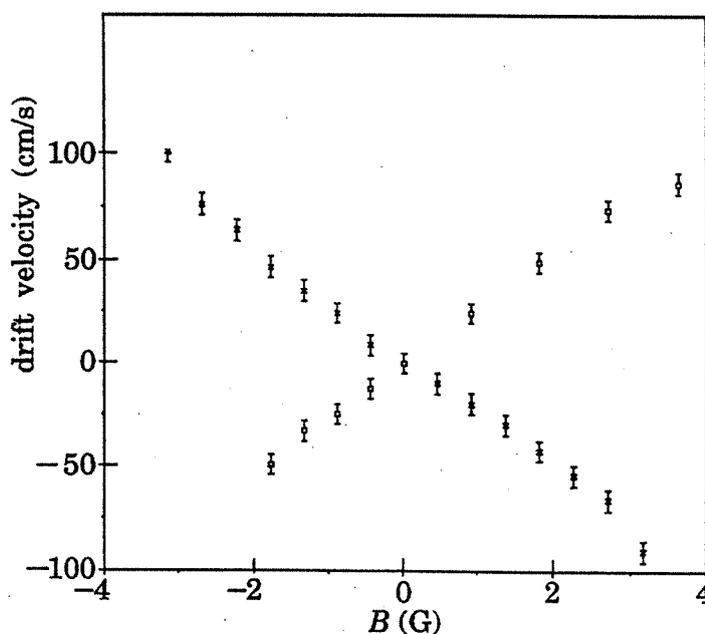


Fig. I-2-11. Vitesse de dérive transverse des molasses $\sigma^+ - \sigma^-$ en fonction du champ magnétique. Les croix correspondent à la transition $F=4 \rightarrow F'=5$ et les carrés à la transition $F=3 \rightarrow F'=2$.

β. Configuration lin. ⊥ lin.

La dérive de mélasse sub-Doppler a été aussi observée dans la configuration lin ⊥ lin. Dans cette configuration nous avons appliqué un champ magnétique selon la direction de polarisation de l'un des deux faisceaux, B_x par exemple (Fig. I-2-12).

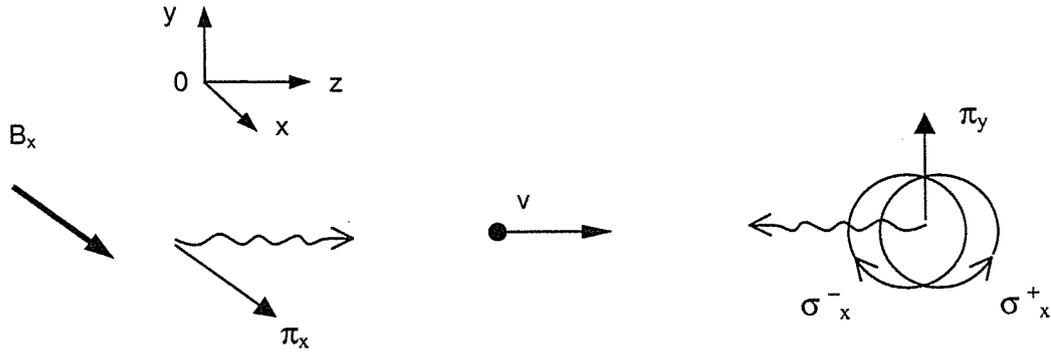


Fig. I-2-12. Mélasse Sisyphé en présence d'un champ magnétique.

Pour analyser cette configuration, on choisit l'axe Ox comme l'axe de quantification. Un atome se déplaçant sur l'axe Oz interagit donc avec une onde à polarisation π_x et une autre onde à polarisation π_y qui peut être décomposée en deux polarisations circulaires σ_x^+ et σ_x^- . Si on se met sur le référentiel de l'atome, l'onde π_x aurait une fréquence apparente $\omega - kv$, et les ondes σ_x^+ et σ_x^- $\omega + kv$. Pour prendre en compte de l'effet du champ magnétique, on peut utiliser le théorème de Larmor et se mettre dans un référentiel tournant autour de l'axe Ox avec la pulsation $\Omega_B = -g\mu B/\hbar$. Dans ce référentiel déplaçant et tournant les fréquences apparentes des ondes σ_x^+ et σ_x^- deviennent $\omega - \Omega_B + kv$ et $\omega + \Omega_B + kv$ respectivement. Cette analyse fait apparaître donc deux mélasses : l'une formée entre l'onde π_x et l'onde σ_x^+ et l'autre entre π_x et σ_x^- . La vitesse d'équilibre est déterminée par la balance entre les fréquences apparentes des deux ondes formant la mélasse. Pour la mélasse $\pi_x - \sigma_x^+$ on trouve $v_+ = \frac{\Omega_B}{2k}$, et pour la mélasse $\pi_x - \sigma_x^-$, $v_- = -\frac{\Omega_B}{2k}$. La dérive est donc ici deux fois plus faible que dans la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$, c'est-à-dire, pour le césium, $\pm 14,9$ cm/s/G.

Expérimentalement les deux mélasses ne paraissent pas d'une façon symétrique à cause du désaccord de la fréquence laser (ω). Notamment pour la transition $F=4 \rightarrow F'=5$, on observe un pic dominant. Quand le champ magnétique est positif ce pic correspond à la mélasse $\pi_x - \sigma_x^-$ et quand le champ est négatif à la mélasse $\pi_x - \sigma_x^+$. La figure I-2-13 donne les mesures de la vitesse de dérive du pic dominant en fonction du champ magnétique. Au-delà d'un plateau autour du zéro du champ magnétique (± 1 Gauss), la vitesse de dérive augmente linéairement avec le champ. Une pente de -18 cm/s/G est mesurée, qui est plus grande que la valeur théorique. Cette différence peut être interprétée par l'existence d'un seuil du champ magnétique, en dessous duquel la mélasse Sisyphé résiste à l'effet du champ magnétique. Expérimentalement ce seuil diminue lorsque la puissance laser dans la mélasse diminue. A faible puissance ($0,4$ mW/cm²), on trouve une pente de $15,5$ cm/s/G très proche de la valeur théorique.

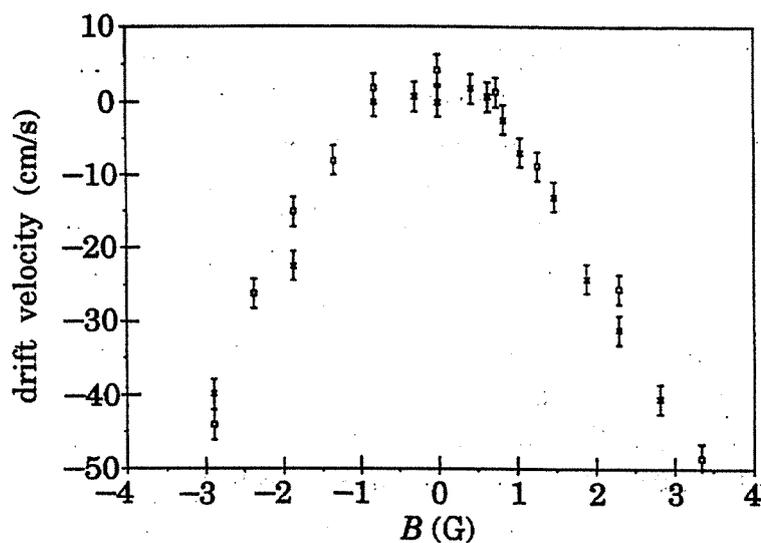


Fig. I-2-13. Vitesse de dérive transverse d'une mélasses lin \perp lin en fonction du champ magnétique.

I.2.3 Conclusion

En conclusion nous avons, pendant la période de 90-91 au Laboratoire Aimé Cotton, étudié d'une manière systématique les mélasses optiques à une dimension. Nous avons notamment comparé les mélasses optiques sub-Doppler de différentes configurations induites soit par un gradient de polarisation soit par un champ magnétique de faible intensité. Les mélasses en mouvement ont été aussi étudiées. Nos résultats sont bien interprétés par les modèles développés à partir de l'effet Sisyphe initialement introduit par Jean Dalibard et Claude Cohen-Tannoudji. Cette étude exhaustive des mélasses sub-Doppler a été possible grâce notamment à la simplicité d'une mélasse à une dimension.

Références :

1. Steven Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, Alex Cable, and A. Ashkin, « Three-Dimensional Confinement and Cooling of Atoms by Resonance Radiation Pressure », *Phys. Rev. Lett.* **55**, 48 (1985).
2. Paul D. Lett, Richard N. Watts, Christoph I. Westbrook, and William D. Phillips, « Observation of Atoms Laser Cooled below the Doppler Limit », *Phys. Rev. Lett.* **61**, 169 (1988).
3. J. Dalibard, C. Salomon, A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, C. Cohen-Tannoudji, « New Schemes in Laser Cooling », *Atomic Physics 11*, S. Haroche, J. C. Gay, and G. Grynberg, eds. (World Scientific, Singapor, 1989), p.199.
4. Steven Chu, D.S. Weiss, Y. Shevy, and P.J. Ungar, « Laser Cooling due to Atomic Dipole Orientation », *Atomic Physics 11*, S. Haroche, J. C. Gay, and G. Grynberg, eds. (World Scientific, Singapor, 1989), p.636.
5. J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, « Laser cooling below the Doppler limit by polarisation gradients : simple theoretical models », *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2023 (1989).
6. Y. Castin and J. Dalibard, *Europhys. Lett.* **14**, 761 (1991).
7. S. Q. Shang, B. Sheehy, H. Metcalf, P. Van Der Straten, and G. Nienhuis, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 1094 (1991).

Nos publications sur ce travail :

1. C. Valentin, M.-C. Gagné J. Yu and P. Pillet, « One-dimension sub-Doppler molasses in the presence of static magnetic field », *Europhys. Lett.* **17**, 133 (1991).
2. P. Pillet, M.-C. Gagné, C. Valentin and J. Yu, « Experimental study of one-dimension sub-Doppler molasses effects », *Laser Spectroscopy, TENICOLS '91*, Ed. M. Ducloy, E. Giacobino et G. Camy, World Scientific, 50 (1992).
3. J. Yu, M.-C. Gagné, C. Valentin, S. Guellati, J. Djemaa, R.-L. Yuan and P. Pillet ; « Effects of a static magnetic field on sub-Doppler molasses: manipulation of cesium atoms », *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **42**, 109 (1993).

Thèse soutenue sur ce travail dans notre équipe :

Constance Valentin, «Manipulation non-cohérente et cohérente d'un jet atomique de césium par laser: Mélasses optiques dans un champ magnétique et transfert adiabatique de population», Université Paris-Sud, Orsay (1994).

Chapitre I.3

Transfert Adiabatique de Population et de Quantité de Mouvement : Manipulation Cohérente d'Atomes par Laser

I.3.1 Optique et interférométrie atomiques : motivation pour une manipulation cohérente d'atomes par laser

Depuis Louis de Broglie, la physique moderne considère la nature ondulatoire comme une propriété fondamentale de la matière. La longueur d'onde associée à cette onde de matière est donnée par celle de de Broglie $\lambda = h/p$, où h est la constante de Planck et p la quantité de mouvement associée à une particule de masse m et se déplaçant à une vitesse v : $p = mv$. Pour une particule comme un atome, la nature ondulatoire est souvent très difficile voire impossible à observer car la longueur d'onde associée est extrêmement petite. Par exemple pour un atome de césium animé d'une agitation thermique à la température ambiante, sa vitesse est de l'ordre de 200 m/s. A cette vitesse correspond à une longueur d'onde de 0,15 Å .

Le refroidissement d'atomes par laser a ouvert de nouvelles perspectives. Le refroidissement sub-Doppler permet d'atteindre des températures extrêmement basses. Dans une mélasse optique, une température inférieure à 3 μ K est mesurée pour des atomes de césium ¹. La vitesse thermique de ces atomes est alors réduite à 12,5 mm/s. La longueur d'onde de de Broglie associée devient 242 nm. C'est une longueur d'onde optique ! Il devient tout à fait raisonnable de traiter un atome comme un paquet d'onde et d'envisager une optique atomique.

Avec les progrès en refroidissement laser, les interféromètres à onde de matière associée à un atome est devenu un domaine de recherche très actif ². Le principal intérêt d'un interféromètre à atomes, par rapport à un interféromètre optique ou celui à électrons ou à neutrons, est son extrêmement grande sensibilité. D'une part la masse importante des atomes conduit à une longueur d'onde très courte, d'autre part la faible vitesse, notamment avec des atomes refroidis par laser, permet à un temps d'interaction très long. Cette grande sensibilité permet d'étudier toutes les interactions agissant sur le mouvement externe d'un atome, qui peut être dues à la gravité, aux accélérations, aux ondes électromagnétiques, aux champs électrique et magnétique statiques et même au champ du vide. Par rapport à d'autres interféromètres à l'onde de matière (électrons, neutrons), l'interféromètre à atomes offre la possibilité d'étudier des effets liés à la structure interne atomique. Sa réalisation a l'avantage d'être relativement peu chère et compacte. Enfin l'interféromètre atomique promet des instruments de mesure extrêmement sensibles, qui intéressent à des applications comme la navigation, la géophysique, mais aussi la physique fondamentale pour le test de la relativité générale par exemple.

La réalisation de miroirs et de séparatrices pour atomes est la clé de la construction d'un interféromètre à atomes. Les interactions atome-laser sont bien sûr des processus privilégiés pour manipuler des atomes. Parmi ces processus on peut distinguer deux catégories : La première fait intervenir l'émission spontanée, qui par sa nature aléatoire détruit la cohérence du paquet d'onde atomique chaque fois qu'un photon spontané est émis ; Dans la deuxième catégorie, interaction entre un champ laser et un atome passe uniquement par le processus d'absorption et d'émission spontanée. La cohérence d'un paquet d'onde atomique est alors préservée. Pour observer des interférences atomiques, un miroir ou une séparatrice pour atomes doit utiliser un processus dans cette dernière catégorie.

I.3.2 Transfert adiabatique de population et de quantité de mouvement via un état piège

En 1989 P. Marte et al. dans un papier théorique ³ propose une méthode pour réaliser un miroir ou une séparatrice à atomes cohérent. Cette méthode est basée sur le concept du transfert adiabatique de population dans un processus Raman avec deux impulsions laser décalées dans le temps. Ce concept est initialement considéré théoriquement dans le contexte

de la physique moléculaire par Oreg et al.⁴ et Carroll et al.⁵. La démonstration expérimentale avec la molécule Na₂ est due à Bergmann et ses collaborateurs⁶. Les auteurs de ce travail ont baptisé leur méthode STIRAP (STImulated RAmAn scattering with Partially overlapping laserfield).

1.3.2.a Transition Λ et état piège

La méthode proposée est basée sur une transition Λ ($J=1 \rightarrow J'=1$ par exemple) excitée par une paire de faisceaux laser de polarisation σ^+ - σ^- et se propageant dans les sens opposés (Fig. I-3-1). $\Omega_{\pm}(t)$ sont les fréquences de Rabi et leur dépendance temporelle peut être due soit à une variation temporelle de l'intensité des faisceaux laser soit au déplacement de l'atome à travers les faisceaux laser.

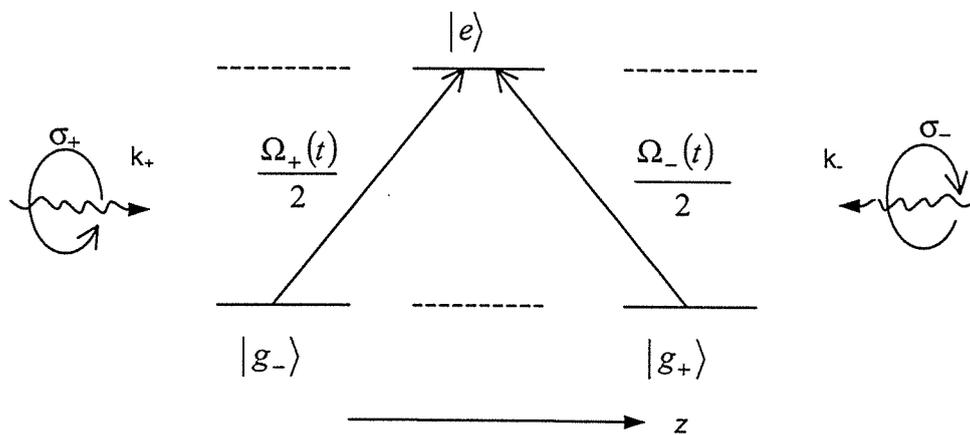


Fig. I-3-1. Transition $J=1 \rightarrow J'=1$ excitée par une paire de faisceaux laser de polarisation σ^+ et σ^- .

Un ensemble de problèmes relatifs à cette transition est traité en détail par Claude Cohen-Tannoudji dans son cours au Collège de France en 91-92. Suivons le raisonnement de ce cours et plaçons-nous dans le cas spécial où la condition de résonance Raman est satisfaite : $\delta_+ = \delta_- = \delta$. (δ_i sont les désaccords) et l'atome a une vitesse nulle suivant l'axe z . Du point de vue de l'atome habillé, on peut considérer la multiplicité suivante $E(N_+, N_-)$ (Fig. I-3-2):

$E(N_+, N_-) = \{|e, N_+, N_-\rangle, |g_-, N_+ + 1, N_-\rangle, |g_+, N_+, N_- + 1\rangle\}$. Le Hamiltonien d'interaction atome-laser possède la propriété de ne coupler que les trois états à l'intérieur de cette multiplicité. Le passage d'une multiplicité à une autre ne peut se faire que par une émission spontanée.

Une propriété très intéressante apparaît lorsqu'on cherche un état propre du système sous une forme d'une combinaison des deux états du fondamental :

$$|\psi_{NC}\rangle = \frac{\Omega_-(t)|g_-, N_+ + 1, N_-\rangle - \Omega_+(t)|g_+, N_+, N_- + 1\rangle}{\Omega(t)}, \text{ où } \Omega(t) = \sqrt{\Omega_+^2(t) + \Omega_-^2(t)}. \text{ En effet}$$

on peut vérifier que l'élément de matrice $\langle \psi_{NC} | e, N_+, N_- \rangle = 0$. Alors un état orthogonal

$$\text{à } |\psi_{NC}\rangle : |\psi_C\rangle = \frac{\Omega_+(t)|g_-, N_+ + 1, N_-\rangle + \Omega_-(t)|g_+, N_+, N_- + 1\rangle}{\Omega(t)} \text{ donner élément de matrice}$$

non nul : $\langle \psi_C | e, N_+, N_- \rangle = \frac{\hbar \Omega(t)}{2}$. Donc il apparaît dans la nouvelle base deux états dont l'un couplé avec l'état excité et l'autre complètement découplé de celui-ci (l'état non couplé) (Fig. I-3-3).

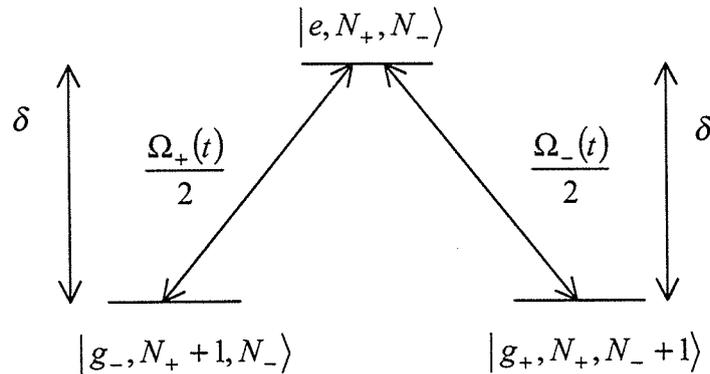


Fig. I-3-2. Multiplicité $E(N_+, N_-)$ d'un atome habillé.

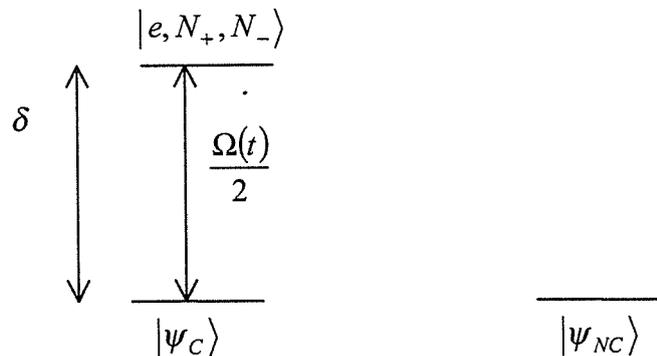


Fig. I-3-3. Nouvelle base et état non couplé.

On remarque que le découplage entre l'état excité et l'état non-couplé est complet seulement si la condition de la résonance Raman est réalisée dans le référentiel qui déplace avec l'atome : $\tilde{\delta}_+ - \tilde{\delta}_- = (\delta_+ - k_+ v_z) - (\delta_- - k_- v_z) = 0$. En effet on peut montrer un terme de couplage existe entre les deux états fondamentaux : $\frac{\hbar \Omega_+ \Omega_-}{\Omega^2} (\tilde{\delta}_+ - \tilde{\delta}_-)$.

Il existe donc un état piège dans un système Λ excité par une paire de faisceaux σ^+ et σ^- . Avec émissions spontanées, cet état peut être rempli et la population déconnectée du champ laser, y sont définitivement piégée. L'état piège est l'origine de nombreux phénomènes observés : La transition noire qui consiste à observer une perte de fluorescence dans une configuration Raman lorsque la fréquence de l'un des deux lasers est balayé autour de la résonance Raman.^{7, 8} Plus récemment, Le refroidissement sub-recul a été démontré sur

l'atome de l'hélium métastable.⁹ Dans cette expérience des atomes sont piégés dans un état non couplé : $|\psi_{NC}(p)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|g_-, p - \hbar k\rangle + |g_+, p + \hbar k\rangle]$. C'est une superposition des deux états à quantité de mouvement fixe. Deux pics séparés par $2\hbar k$ ont été observés, la finesse des pics, inférieure à $\hbar k$ (quantité de mouvement de recul lorsqu'un atome émet un photon) démontrant le refroidissement sub-recul.

I.3.2.b Transfert adiabatique de population et de quantité de mouvement via un état piège

Le concept de base du transfert adiabatique est de trouver une évolution adéquate du champ laser de manière à transférer la population atomique, initialement dans un état vers un autre état en passant par un état piège. Dans la méthode STIRAP, comme dans la méthode proposée par Marte et al., la zone de transfert consiste en deux faisceaux laser parallèles avec un recouvrement partiel (Fig. I-3-4). On suppose que la population atomique est initialement préparée dans l'état $|g_+\rangle$. Et remarquons que l'impulsion à σ^+ précède bien celle à σ^- .

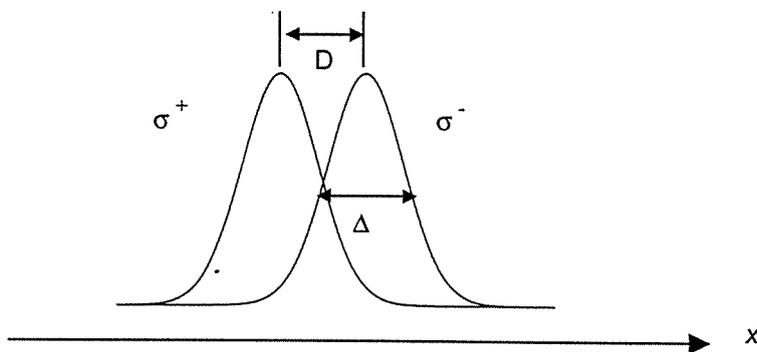


Fig. I-3-4. Recouvrement partiel des deux faisceaux laser.

Des atomes se propageant le long de l'axe x verront un champ laser d'abord de polarisation σ^+ et puis après la zone de recouvrement de polarisation σ^- . Si les atomes sont initialement préparés dans l'état $|g_+\rangle$, ils sont automatiquement dans l'état non couplé, puisque Ω_+ est branchée la première avant Ω_- et $|\psi_{NC}\rangle$ se confond avec $|g_+\rangle$ pour $\Omega_- = 0$. Maintenant les atomes traversent la zone de recouvrement, si la condition d'adiabaticité est réalisée, les atomes restent dans l'état non couplé. Cet état non-couplé deviendra $|g_-\rangle$ lorsqu'ils s'éloigneront de la zone d'interaction, puisque Ω_+ est débranchée la première. Ici un transfert de population est réalisé avec un taux de transfert pouvant atteindre 100% sans qu'aucun photon de fluorescence ne soit émis.

Insistons sur le fait que l'impulsion σ^+ doit précéder σ^- , condition qui n'est pas intuitive. Puisque les atomes sont préparés initialement dans l'état $|g_+\rangle$, on s'attend que l'impulsion σ^- soit branchée d'abord pour faire passer les atomes à $|e\rangle$, puis l'impulsion σ^+ est branchée pour le passage $|e\rangle \rightarrow |g_-\rangle$. En fait ici le passage $|g_+\rangle \rightarrow |g_-\rangle$ n'est pas dû à un processus à

deux étages. On utilise plutôt le suivi adiabatique dans l'état non couplé, qui à tout instant ne contient aucune contamination de $|e\rangle$. C'est donc un processus tout à fait cohérent.

En ce qui concerne le transfert de quantité de mouvement, si les deux faisceaux laser se propagent dans le même sens (suivant Oz par exemple), le bilan global est nul. Parce qu'en terme d'échange de photons, un photon σ^- est absorbé et un photon σ^+ est émis d'une façon stimulée. Tous les deux processus communiquent à l'atome une quantité de mouvement $\hbar k$ mais dans les sens opposés. Si les deux faisceaux laser se propagent dans les sens opposés, on peut montrer facilement qu'une quantité de mouvement de $2\hbar k$ est communiquée à chaque atome pendant le transfert. En effet un photon σ^- est absorbé avec une quantité de mouvement $\hbar k$ et un photon σ^+ est émis avec une quantité de mouvement $-\hbar k$.

L'évolution détaillée du système peut être trouvée en résolvant l'équation de Schrödinger dans une base où le Hamiltonien est diagonalisé. Le calcul est disponible dans le cours de Claude Cohen-Tannoudji et également dans la référence 6 (Gaubatz et al. 90). Nous avons aussi effectué une simulation dont les résultats sont présentés sur la figure I-3-5. On voit donc un recouvrement optimum à $D = -1,0 \Delta$, et un taux de transfert quasiment 100% à ce recouvrement.

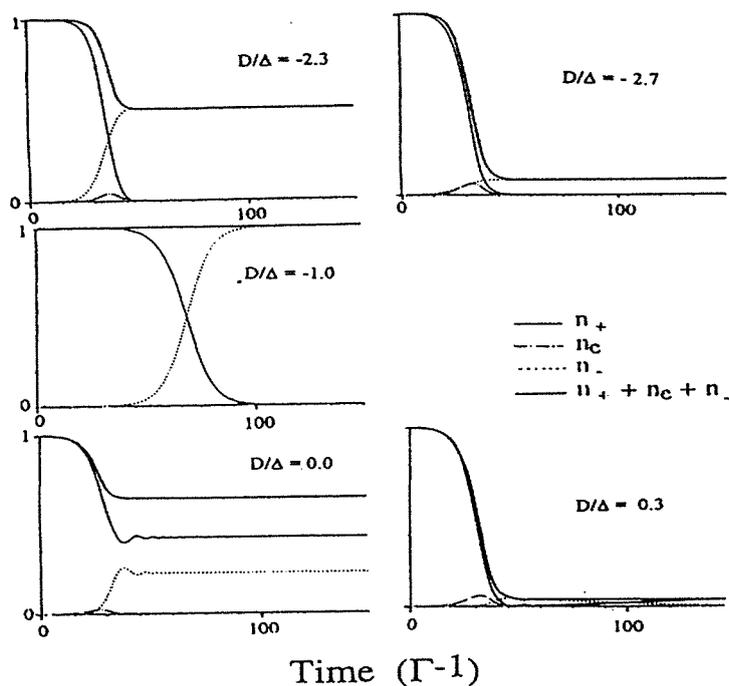
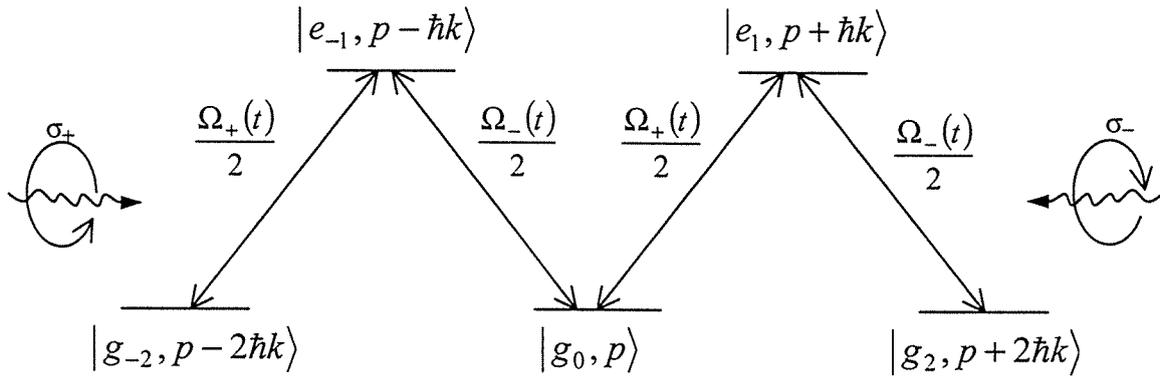


Fig. I-3-5. Evolution des population dans les trois niveaux pour des différents recouvrement des deux faisceaux.

La condition d'adiabaticité est également discutée. Lorsque les faisceaux laser sont en résonance avec la transition atomique, elle est donnée par $\Omega(t) > 1/\Delta$, ce qui implique un couplage laser-atome fort (faible désaccord et fort intensité).

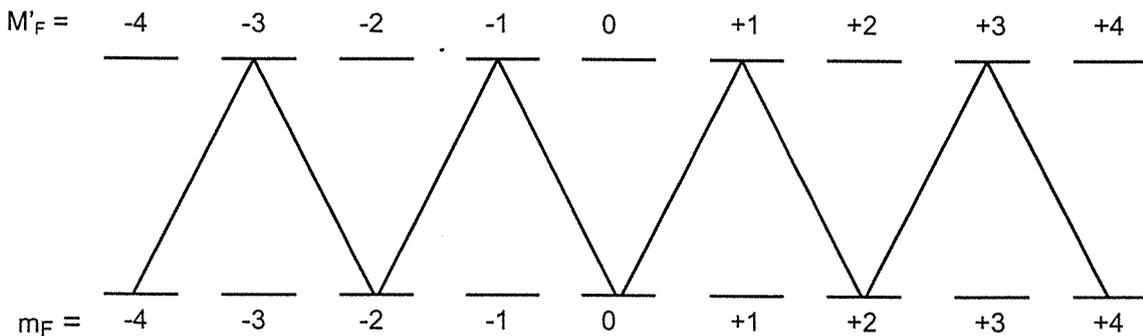
Ce mécanisme de transfert de population et de quantité de mouvement peut être généralisé à d'autres systèmes atomiques à transition plus complexe. Un système multi- Λ peut-être envisagé. L'avantage d'un tel système est qu'un nombre important de quantités de mouvement peut être communiqué à un atome. La figure I-3-6 montre un exemple de transfert à $4\hbar k$.

Fig. I-3-6. Système multi- Λ .

I.3.3 Mise en œuvre du transfert adiabatique de population et de quantité de mouvement avec l'atome de césium

I.3.3.a Présentation de la transition utilisée

Pour la démonstration du transfert adiabatique dans un système multi- Λ , nous utilisons la composante hyperfine $F=4 \rightarrow F'=4$ (Fig. I-3-7) de la raie D_2 du césium dont la résonance se situe à 852,124 nm (voir l'annexe du I.1).

Fig. I-3-7. Transition $F=4 \rightarrow F'=4$ du césium.

Si initialement la population atomique est préparée dans le sous-niveau $m_F = +4$, le transfert vers le sous-niveau $m_F = -4$ peut communiquer une quantité de mouvement de $8\hbar k$ à l'atome. Néanmoins la masse importante de l'atome de césium atténue l'effet en terme de vitesse affectée, ce qui augmente la difficulté expérimentale.

I.3.3.b Dispositif expérimental

Le montage expérimental est présenté sur la figure I-3-8. Des atomes de césium issus du four sont collimatés par une fente verticale de 100 μm d'ouverture. Ils croisent successivement cinq faisceaux laser éclairant le jet atomique perpendiculairement. La zone d'expérience est enveloppée dans trois paires de bobines Helmholtz qui compensent le champ magnétique

terrestre et applique un champ magnétique directeur de 100 mG suivant la direction de propagation des faisceaux laser.

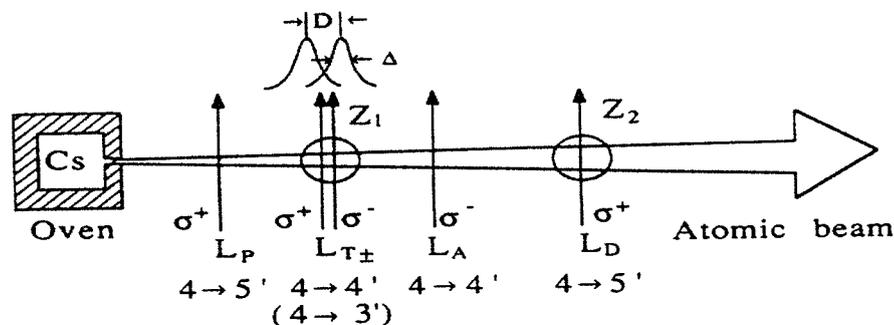


Fig. I-3-8. Montage expérimental

α . Faisceau de pompage

L_p , le faisceau de pompage Zeeman, est accordé sur la transition $F=4 \rightarrow F'=5$ et polarisé σ^+ . Son rôle est de regrouper la population atomique initialement répartie sur les 9 sous-niveaux Zeeman du niveau hyperfin $F=4$ (50% de la population totale) vers un seul sous-niveau $m_F = +4$. Une diode laser (HITACHI 1400) stabilisée par le feed-back d'une cavité Fabry-Perot et asservie sur une cellule de césium, fournit ce faisceau avec une puissance de 3,2 mW sur une section de $0,45 \text{ cm}^2$.

β . Faisceaux de transfert

La population atomique polarisée traverse ensuite la zone de transfert (Z_1) située 10 mm plus loin. Dans cette zone on trouve les deux faisceaux de transfert L_{T+} et L_{T-} . Leur recouvrement peut être ajusté par une platine de déplacement micrométrique. Ils se propagent dans le même sens pour le transfert de population, et dans les sens opposés pour le transfert de quantités de mouvement. On utilise une diode laser (STC) de 50 mW bloqué en mode par l'injection d'une diode (HITACHI 1400) stabilisée par le feed-back d'une cavité Fabry-Perot. Un modulateur acousto-optique est utilisé pour pouvoir décaler la fréquence de l'esclave par rapport au maître et fournir un désaccord aux faisceaux de transfert. Le faisceau issu de la diode STC est séparé en deux par un polariseur combiné à une lame de retard $\lambda/2$, cette dernière permet un réglage des intensités relatives des deux faisceaux. Les deux faisceaux sont ensuite recombinés par un autre polariseur avec un recouvrement partiel. Une lame de retard $\lambda/4$ transforme les polarisations des deux faisceaux en circulaire mais avec les sens de rotation opposés. Un télescope cylindrique est utilisé pour collimater les faisceaux dans le sens de la largeur. On trouve finalement dans la zone de transfert une section des faisceaux de $0,5 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$ ($L \times H$). Pour bien définir le profil des faisceaux de transfert, une cellule de césium de 10 cm de long est placée dans les faisceaux avant que ceux-ci n'entrent dans la zone de transfert. Par absorption saturée, seule la partie centrale des faisceaux émerge de la cellule, et les 'ailes' sont enlevées.

Les puissances des deux faisceaux laser de transfert sont optimisées au cours de l'expérience en regardant sur le signal de transfert. Nous avons utilisé finalement une puissance de 1,2 mW pour L_{T+} et 0,65 mW pour L_{T-} . La différence entre les puissances

s'explique par la différence en profils de deux faisceaux. Les paramètres de saturation correspondant sont $s_+ = 46$ et $s_- = 24,5$ calculés en supposant qu'ils ont la même section de $0,5 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$.

Pour le jet atomique utilisé, le temps de transit dans la zone de transfert est d'environ $3 \mu\text{s}$ (300 m/s , 1 mm), ce qui impose un temps de cohérence supérieur ou égal à $3 \mu\text{s}$ aux faisceaux laser de transfert. En terme de largeur spectrale, ce temps de cohérence correspond à une largeur d'environ 300 kHz . Cette performance est parfaitement réalisable avec notre système de diode injectée avec une diode maître qui est elle-même stabilisée sur une cavité Fabry-Perot. En effet un battement entre les deux faisceaux de transfert montre un temps de cohérence supérieur à 1 ms .

χ . Faisceau d'analyse

Environ 10 mm plus loin, le faisceau d'analyse est accordé sur la transition la $F=4 \rightarrow F'=4$ avec la polarisation σ^- . Son rôle est de nettoyer la population atomique non transférée au sous-niveau $m_F = -4$ par pompage optique. Le faisceau est issu d'une diode STC bloquée en mode par l'injection de la même diode maître que les faisceaux de transfert. Un deuxième modulateur acousto-optique est utilisé pour décaler indépendamment la fréquence du faisceau d'analyse par rapport à la diode maître. La puissance envoyée dans ce faisceau est de 3 mW sur une section de $4 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$.

δ . Faisceau de détection

La zone de détection (Z_2) consiste en un faisceau accordé sur la transition $F=4 \rightarrow F'=5$, qui induit une fluorescence proportionnelle à la population transférée dans le sous-niveau $F=4$, $m_F = -4$. Ce faisceau est fourni par une diode HITACHI en fonctionnement libre et asservie sur la transition $F=4 \rightarrow F'=5$ induite dans une cellule. Sa puissance est 9 mW sur une section de $8 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$.

ϵ . Détections

Une première détection est fournie par une caméra fixée au-dessus de la zone de transfert (Z_1), qui donne une détection en 2 dimensions de la fluorescence induite par les 2 faisceaux de transfert. Une deuxième détection consiste en une photodiode (Hamamatsu S1337/1010BR) placée au-dessus du faisceau de détection (Z_2).

I.3.3.c Résultats expérimentaux

α . Transfert de population

La figure I-3-9 montre des profils des images vidéo prises sur la zone de transfert. En (a) les deux faisceaux sont séparés. On voit une fluorescence intense induite par le faisceau L_{T-} . Cette fluorescence est atténuée lorsque le faisceau L_{T+} recouvre partiellement L_{T-} . (b). C'est le signe d'un transfert d'une partie de population vers le sous-niveau $m_F = -4$. Une fluorescence plus faible est aussi observée pour le faisceau L_{T+} , ce qui est dû à une imperfection de la polarisation laser et à un pompage optique incomplet des atomes.

Le signal de la photodiode est mesuré en fonction du recouvrement entre les faisceaux de transfert. La figure I-3-10 montre le résultat. La courbe S_2 donne la variation de la fluorescence induite par le faisceau de détection. Ce signal est normalisé avec la fluorescence

obtenue lorsqu'on obstrue les faisceaux de transfert et celui d'analyse (population initialement dans $m_F = +4$). La courbe S_2 représente donc le pourcentage d'atomes qui ont été transférés du niveau $m_F = +4$ vers le niveau $m_F = -4$ via l'état piège. On constate que ce taux de transfert est maximal pour $D/\Delta = -1,5$ et a une valeur de 50%. La courbe S_1 représente la hauteur du pic de fluorescence induite par L_T . (Fig. I-3-9) normalisée à 1 pour sa valeur maximale (pas de recouvrement entre L_{T+} et L_{T-}). Elle représente donc l'inhibition de la fluorescence due au transfert adiabatique vers $m_F = -4$. On voit que l'augmentation de la fluorescence dans la zone de détection est corrélée à l'inhibition de celle dans la zone de transfert.

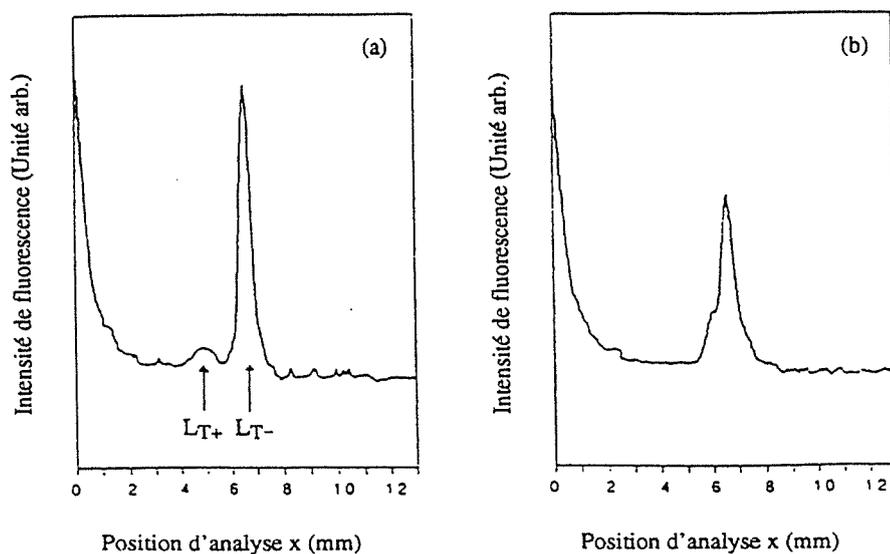


Fig. I-3-9. Profils des images vidéo prises dans la zone de transfert.

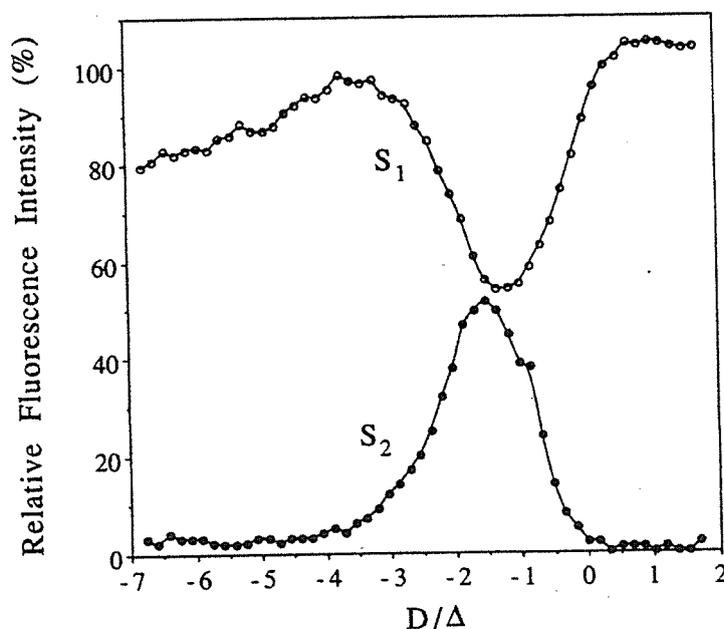


Fig. I-3-10. Augmentation de la fluorescence (normalisée) dans la zone de détection et inhibition de celle induite par L_T dans la zone de transfert.

En se mettant à $D/\Delta = -1$ où le taux de transfert est égal à 40% pour un désaccord nul des faisceaux de transfert, la fluorescence induite par le faisceau de détection est mesurée en fonction du désaccord. Le résultat est montré sur la figure I-3-11. On voit le taux de transfert décroît de part et d'autre de la résonance, ce qui montre l'importance d'un couplage fort entre le laser et les atomes pour bien remplir la condition d'adiabaticité.

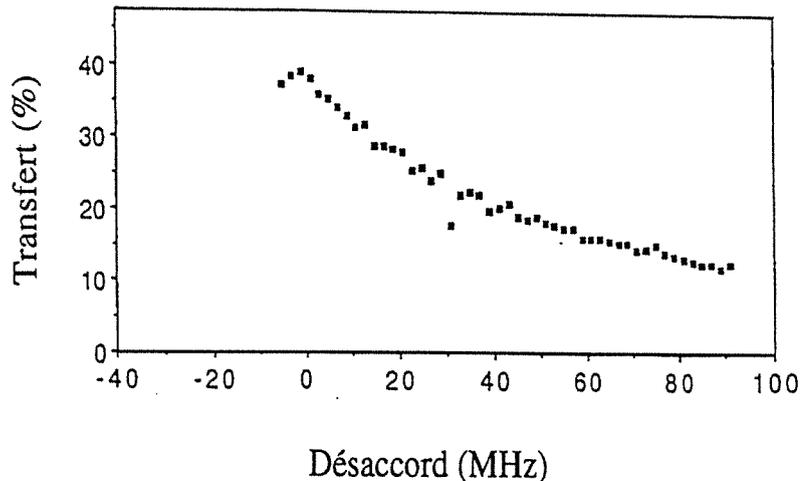


Fig. I-3-11 Taux de transfert en fonction du désaccord.

β. Influence des niveaux voisins

Dans notre expérience, le taux de transfert est limité à 50%, alors que le modèle à trois niveaux prédit un transfert proche de 100%. Pour comprendre cette limitation, nous avons effectué un calcul en incluant les autres niveaux hyperfins de la multiplicité $6p \ ^2P_{3/2}$ (voir l'annexe du I-1). Notamment $F' = 5$ et $F' = 3$, ils sont à 201,5 MHz et 251.4 MHz du niveau utilisé dans le transfert, $F' = 4$. Bien que les écarts soient très grands devant la largeur naturelle de la transition ($\Gamma \sim 5$ MHz), avec une excitation à fort paramètre de saturation, les probabilités de transition vers ces niveaux voisins deviennent non négligeables. Ces excitations constituent une perte de la population atomique par la voie de pompage optique. La figure I-3-12 montre les résultats du calcul pour de différents paramètres de saturation et en fonction du recouvrement des faisceaux de transfert. Les courbes en trait plein correspondent au taux de transfert et celles en pointillés au taux d'inhibition.

On voit que le taux de transfert maximal est à 65% pour un paramètre de saturation de $s=18$. Pour un s inférieur, la condition d'adiabaticité moins bien remplie réduit le taux de transfert et pour un s supérieur, une excitation plus importante des niveaux voisins diminue également le taux de transfert.

Une transition isolée est donc plus favorable au transfert. Pour le césium, la raie D_1 ($\lambda = 894$ nm) sera un bon candidat (voir l'annexe du I-1). Pour cette transition, la multiplicité $6p \ ^2P_{1/2}$ comporte deux niveaux hyperfins, $F' = 3$ et 4, séparés par un intervalle de 1167,6 MHz. Une simulation avec la composante $F=4 \rightarrow F'=4$ de la raie D_1 est donnée sur la figure I-3-13. On voit que le taux de transfert peut atteindre 90%. Néanmoins cette transition est plus difficile à atteindre avec des diodes laser, l'emploi d'un laser à Ti:Saphir est souhaitable.

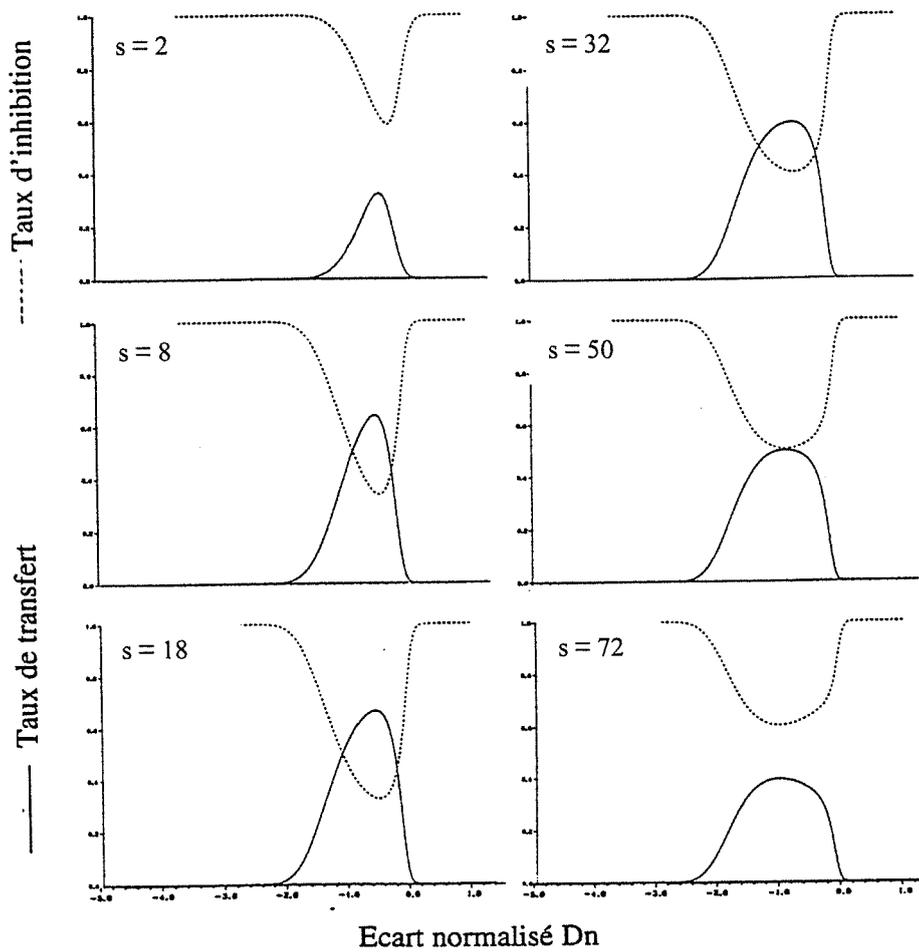


Fig. I-3-12. Taux de transfert et d'inhibition calculés en fonction du recouvrement et pour de différents paramètres de saturation. Le calcul prend en compte les niveaux voisins dans la multiplicité $6p^2P_{3/2}$.

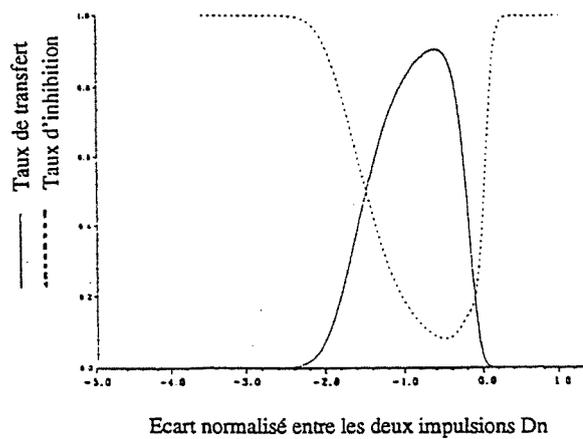


Fig. I-3-13. Taux de transfert et d'inhibition en fonction du recouvrement calculés pour la composante $F=4 \rightarrow F'=4$ de la raie D_1 .

χ . Transfert de quantité de mouvement

Pour qu'une quantité de mouvement soit transférée aux atomes, les deux faisceaux de transfert doivent se propager dans les sens opposés. Le montage de la figure I-3-8, est donc légèrement modifié. On supprime également le faisceau d'analyse et celui de détection.

Une différence importante par rapport à la configuration des faisceaux dans la même direction est que maintenant la condition de résonance Raman n'est remplie que pour des atomes à vitesse transverse (suivant direction de propagation des faisceaux) nulle, puisque cette condition exige $(\delta_+ - k_+ v_z) - (\delta_- - k_- v_z) = 0$. Pour $\delta_+ = \delta_- = \delta$ et $k_- = -k_+$, cette condition conduit à $v_z = 0$.

Expérimentalement, lorsqu'on fait rapprocher le faisceau L_{T+} du faisceau L_{T-} , un linge sombre apparaît sur l'axe de propagation du jet atomique au milieu de la tâche de fluorescence induite par L_{T-} . La diminution de fluorescence dans cette zone correspond au transfert d'une partie de population du niveau $m_F = +4$ vers le niveau $m_F = -4$ via le niveau piège. La figure I-3-14 montre les profils de la tâche de fluorescence induite par le faisceau L_{T-} : (a) quand L_{T+} est bloqué; (b) L_{T+} précède L_{T-} avec un décalage de $-1,5 \Delta$. On observe bien le trait sombre dans le deuxième cas. La largeur de cette zone sombre est liée à la largeur de la transition Zeeman qui est égale à l'inverse du temps d'interaction $\sim 1/3\mu s = 300\text{kHz}$. Seuls les atomes dont la vitesse transverse produit un déplacement Doppler plus petit que cette largeur participent à la transition Raman.

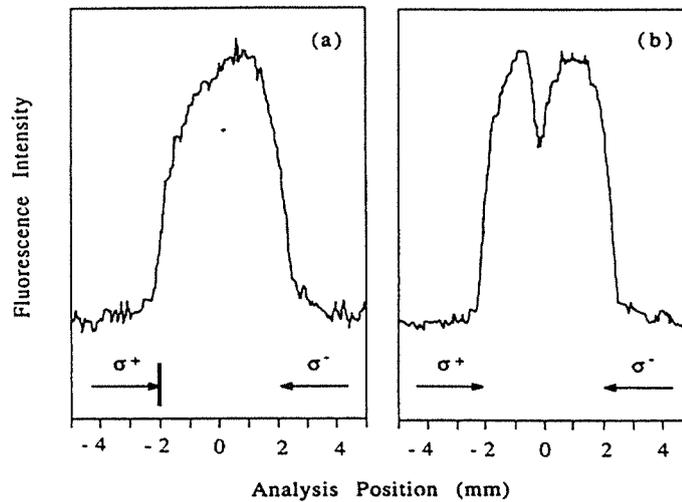


Fig. I-3-14. Profils de la tâche de fluorescence induite par le faisceau L_{T-} .

Les atomes ayant été transférés vers le sous-niveau $m_F = -4$ doivent être en même temps déviés par la quantité de mouvement qu'ils reçoivent. Cette quantité de mouvement vaut $8\hbar k$, correspondant à une vitesse de 2,82 cm/s. Comme la vitesse longitudinale du jet est d'environ 300 m/s, la déviation angulaire est de $9,4 \times 10^{-5}$. Au bout d'un mètre de propagation, la partie centrale du jet atomique aurait été déplacée de 94 μm . Malheureusement ce déplacement n'était pas détectable pour notre système de détection à fil chaud, en effet le diamètre de celui-ci est de 100 μm . L'observation directe de la déviation est possible soit avec un jet atomique plus lent soit avec des atomes moins lourds. Cette observation est faite quelques mois plus tard par l'équipe de William D. Phillips avec un jet de césium formé par des atomes en chute libre lâchés d'une mélasse optique.¹⁰

I.3.4 Conclusion

En conclusion, nous avons pendant la période de 91-92 au Laboratoire Aimé Cotton, étudié le processus de transfert adiabatique via un état de piège de la population et de la quantité de mouvement. Cette étude est motivée par la réalisation d'un miroir à atomes qui réfléchit les atomes d'une manière cohérente. Le transfert adiabatique de population dans un système atomique multi-niveaux a été démontré pour la première fois. Nous avons notamment étudié l'influence des niveaux voisins qui induisent une fuite de population. Nous proposons donc d'utiliser la raie D_1 du césium qui permettra une efficacité de transfert de 100%. Notre simulation confirme cette prédiction.

Références :

1. C. Salomon, J. Dalibard, W.D. Phillips, A. Clairon and S. Guellati, « Laser cooling of cesium atoms below 3 μ K », *Europhys. Lett.* **12**, 683 (1990).
2. Un numéro spécial de *Applied Physics B* a été consacré à ce sujet : *Appl. Phys. B* **54**, (1992).
3. P. Marte, P. Zoller, and J.L. Hall, « Coherent atomic mirrors and beam splitters by adiabatic passage in multilevel systems », *Phys. Rev. A* **44**, R4118 (1991).
4. J. Oreg, F.T. Hioe, and J.H. Eberly, *Phys. Rev. A* **29**, 690 (1984).
5. C.E. Carroll, and F.T. Hioe, *Phys. Rev. A* **42**, 1522 (1990).
6. U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, and K. Bergmann, « Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laserfield. A new concept and experimental results », *J. Chem. Phys.* **92**, 5363 (1990) ; J.R. Kuklinski, U. Gaubatz, F.T. Hioe, and K. Bergmann, « Adiabatic population transfer in a three-level system driven by delayed laser pulses », *Phys. Rev. A* **40**, 6741 (1989).
7. G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, G. Orriol, *Nuovo Cimento B* **36**, 5 (1976) ; E. Arimondo and G. Orriol, *Lett. Nuovo Cimento* **17**, 333 (1976).
8. G. Janik, W. Nagourney, H. Dehmelt, *J.O.S.A. B* **6**, 2108 (1989).
9. A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji, « Laser cooling below the one-photon recoil energy by velocity-selective coherent population trapping », *Phys. Rev. Lett.* **61**, 826 (1988).
10. Lori S. Goldner, C. Gerz, R.J.C. Spreeuw, S.L. Rolston, C.I. Westbrook, and W.D. Phillips, P. Marte and P. Zoller, « Momentum transfer in laser-cooled cesium by adiabatic passage in a light field » *Phys. Rev. Lett.* **72**, 997 (1994).

Nos publications sur ce travail :

1. P. Pillet, C. Valentin, R.-L. Yuan and J. Yu, « Transfer by adiabatic following in a multilevel system », *Phys. Rev A* **48**, 845 (1993).
2. C. Valentin, J. Yu, and P. Pillet, « Adiabatic transfer in $j \rightarrow j$ and $j \rightarrow j-1$ transitions », *J. Phys. II France*, **4**, 1925 (1994).

Thèse soutenue sur ce travail dans notre équipe :

Constance Valentin, « Manipulation non-cohérente et cohérente d'un jet atomique de césium par laser : Mélasses optiques dans un champ magnétique et transfert adiabatique de population », Université Paris-Sud, Orsay (1994).

Chapitre I.4

Piège Opto-Magnétique à Deux Dimensions : Entonnoir à Atomes

I.4.1 De la mélasse optique au piège opto-magnétique

I.4.1.a Force de rappel dans un piège opto-magnétique

Si les mélasses optiques¹ amortissent la vitesse des atomes, elles n'agissent pas sur sa position. En effet la force de mélasse est une force de friction proportionnelle à la vitesse. Alors concentrer les atomes et les piéger nécessitent une force de rappel proportionnelle au déplacement d'un atome par rapport au centre d'un piège.

La première idée, bien avant la mélasse optique soit démontrée, est d'utiliser la force dipolaire (proportionnelle au gradient de l'énergie d'interaction atome-laser) développée autour du foyer commun d'une paire de faisceaux laser se propageant dans les sens opposés et formant une onde stationnaire.^{2,3} Mais dans une onde stationnaire, le gradient de l'intensité le long de l'axe des faisceaux est énorme, conduisant à un coefficient de diffusion prohibitif⁴. L'utilisation d'une paire de faisceaux laser de polarisation σ^+ et σ^- a été donc proposée⁵. Dans l'onde stationnaire formée par une telle paire de faisceaux, la polarisation totale du champ est linéaire mais tourne autour de l'axe de propagation des faisceaux. Cependant l'intensité reste constante tout au long de l'axe.

L'idée d'un piège opto-magnétique (MOT)⁶ est plus récente et est proposée par Jean Dalibard. Le principe est très simple, il combine les pressions de radiation exercées par une paire de faisceaux σ^+ et σ^- et l'effet Zeeman induit par un faible champ magnétique inhomogène. Illustrons ce principe avec une transition du type V à trois niveaux: $J=0 \rightarrow J'=1$ (Fig. I-4-1).

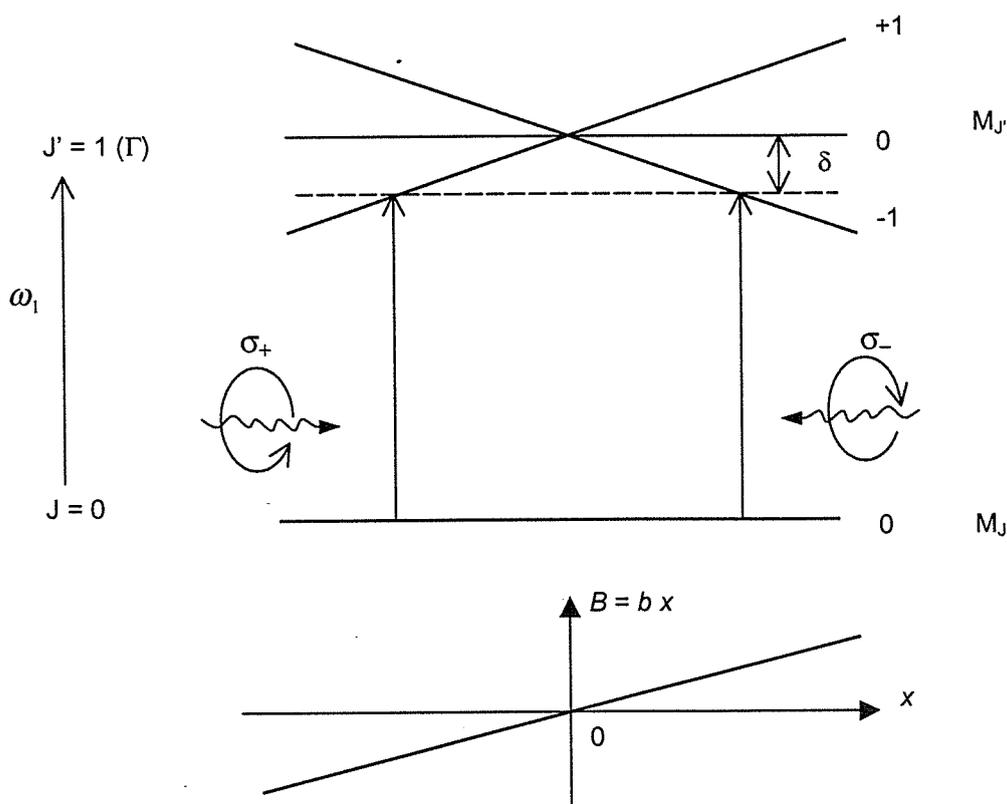


Fig. I-4-1. Principe du piège opto-magnétique.

Pour la simplification ignorons d'abord la vitesse, v , de l'atome. Avec un désaccord rouge par rapport à la résonance à champ magnétique nul, si le déplacement d'un atome est positif, celui-ci absorbe préférentiellement des photons σ^- , puisque la transition $J=0 \rightarrow J'=1, M_J = -1$ est décalée vers le rouge par l'effet Zeeman. L'atome subit donc une force négative nette qui l'attire vers le centre. Si le déplacement est maintenant négatif, alors l'absorption des photons σ^+ est plus probable, la force nette devient positive et attire l'atome toujours vers le centre. L'atome oscille donc autour du centre. Mais la force de mélasse (Doppler) amortit le mouvement oscillatoire. L'atome va être finalement piégé.

Plus précisément on peut écrire les forces de pression de radiation¹ pour chaque faisceau en incluant l'effet Zeeman :

$$F_{\pm}(x, v) = \pm \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{I/I_0}{1 + I/I_0 + [2(\Delta \mp \Omega_L(x) \mp kv)/\Gamma]^2},$$

où I_0 est l'intensité de saturation liée à la fréquence de Rabi ω_1 par $I/I_0 = 2\omega_1^2/\Gamma^2$, $\Delta = \omega_L - \omega_0$ est le désaccord, $\Omega_L(x) = -g\mu_B B(x)/\hbar = 2\pi 1,4 \times B(x)$ MHz/Gauss (pour $g=1$) est la fréquence de Larmor (B en Gauss). A faible intensité, la force totale est égale à la somme des deux forces : $F = F_+ + F_-$. Pour faibles déplacement et vitesse, on peut écrire la force totale sous la forme : $F = -\alpha v - m\omega_0^2 x$, où $\alpha = -\left. \frac{\partial F}{\partial v} \right|_{v=0}$ et $\omega_0^2 = -\left. \frac{1}{m} \frac{\partial F}{\partial x} \right|_{x=0}$.

Le mouvement d'un atome sous cette force est une oscillation amortie dont la constante de temps d'amortissement s'écrit $\tau = \frac{2m}{\alpha}$. Pour des paramètres utilisés dans les expériences on peut montrer⁶ que l'oscillation est toujours sur-amortie. Pour simplification, plaçons-nous dans cas de l'amortissement critique : $\omega_0 = \frac{\alpha}{2m}$, alors on peut écrire τ sous la forme :

$\tau = \frac{\alpha}{2m\omega_0^2}$. A partir de cette expression et en utilisant celle de la force totale, on peut écrire τ

sou la forme : $\tau = \frac{h}{2\lambda} \frac{1}{-\mu_B \left. \frac{\partial B}{\partial x} \right|_{x=0}}$. Un calcul numérique donne pour l'atome de césium

par exemple, en supposant une transition $J=0 \rightarrow J'=1$, $\tau = \frac{4,19}{\left. \frac{\partial B}{\partial x} \right|_{x=0}}$ (ms), ici le gradient de

champ magnétique est en Gauss/cm. Donc la constante de temps d'amortissement ou le temps de capture du piège, est d'une centaine de μs pour un gradient de quelques dizaines de Gauss/cm.

Il est vrai qu'en pratique, la transition peut être plus compliquée, et notamment le fondamental peut avoir plusieurs sous-niveaux. Nous avons vu dans le chapitre I.2 que les effets de refroidissement sub-Doppler peut se produire. Même en se limitant dans l'effet Doppler, un piège fonctionnant avec une transition multi-niveaux peut avoir un comportement différent de ceux que prédit le modèle de la transition V à trois niveaux.

I.4.1.b Piège opto-magnétique à trois dimensions

Le premier piège opto-magnétique a été réalisé par Steven Chu et ses collaborateurs à Bell Laboratoire en 1987⁶ avec l'atome de sodium. Une paire de bobines portant des courants circulant dans les sens opposés produit un champ magnétique avec une variation quadripolaire sphérique. Trois paires de faisceaux σ^+ et σ^- concentrent dans la zone centrale des bobines

pour fournir des forces de piège dans les trois directions orthogonales. Le piège est alimenté par un jet atomique ralenti à 20 m/s. 3×10^6 atomes est piégés dans un volume avec un diamètre de 320 μm , qui correspond à une densité atomique de $1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$. La température dans le piège est estimée à 600 μK .

Trois ans plus tard, C. Wieman et ses collaborateurs au JILA à Colorado ont réalisé, avec un montage très simple, un piège opto-magnétique qui capture des atomes directement d'une vapeur d'atomes de césium à température ambiante⁷. Leur MOT est capable de piéger $1,8 \times 10^7$ atomes dans un volume $< 1 \text{ mm}^3$. Une température sub-Doppler de 1,1 μK a été mesurée sur le nuage d'atomes piégés. Une équipe au Clarendon Laboratory à Oxford a aussi rapporté des températures sub-Doppler dans un MOT à atomes de césium⁸.

I.4.1.c Piège opto-magnétique à deux dimensions : entonnoir à atomes

La version 2D du MOT a été premièrement démontrée par Steven Chu et ses collaborateurs à Stanford University⁹ avec l'atome de sodium. Les auteurs de ce travail ont baptisé leur montage entonnoir à atomes (atom funnel). En effet un jet atomique est compressé dans ses dimensions transversales, tel qu'un télescope réduit la taille d'un faisceau lumineux parallèle. Dans leur montage, une bobine sous la forme d'une épingle à cheveux produit un champ magnétique avec une variation transversal quadratique. L'entonnoir est alimenté par un jet atomique ralenti et refroidi dans une mélasse optique 1D en mouvement. A la sortie de l'entonnoir, un jet compressé de densité 10^8 cm^{-3} a été produit à une vitesse longitudinale de 2,7 m/s.

Un autre entonnoir à atomes de sodium a été réalisé par l'équipe de W. Ertmer à University of Bonn.¹⁰ Quatre aimants permanents ont été utilisés qui produisent un champ magnétique avec une variation transversale quadratique dont le gradient augmente le long de l'axe longitudinal. Un jet atomique de diamètre initial de 3 mm a été compressé à un diamètre de 43 μm et avec une densité de 10^9 atomes cm^{-3} .

I.4.2 Contribution de notre équipe au Laboratoire Aimé Cotton : compression d'un jet de césium pré-orienté

I.4.2.a Présentation de la transition utilisée

Dans l'atome de césium, la transition cyclante $6s \ ^2S_{1/2} F=4 \rightarrow 6p \ ^2P_{3/2} F'=5$ est utilisée pour le piège opto-magnétique. La figure I-4-2 montre les coefficients Clebsch-Gordan pour cette transition.

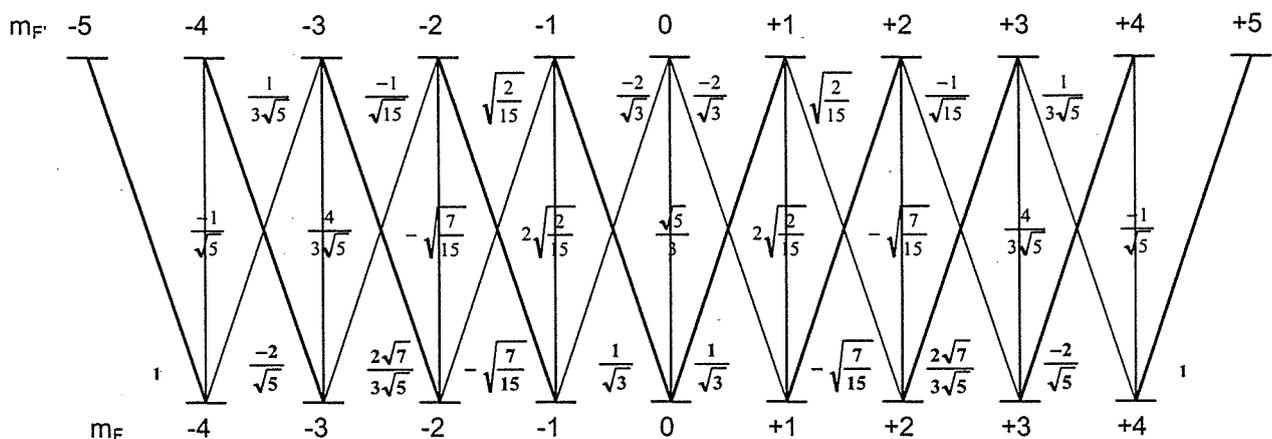


Fig. I-4-2. Coefficients Clebsch-Gordan de la transition $6s \ ^2S_{1/2} F=4 \rightarrow 6p \ ^2P_{3/2} F'=5$.

C'est une transition multi-V, selon le sous-niveau de départ les probabilités de transition σ^+ et σ^- sont en général très différentes, notamment avec un rapport de 45/1 pour les deux sous-niveaux d'extrémité $m_F = \pm 4$.

I.4.2.b Montage expérimental

Pour l'expérience de compression transversale, nous avons construit un nouvel appareil à jet atomique, avec une zone de ralentissement et refroidissement longitudinaux similaire à l'ancien montage (voir le chapitre I.1). A la fin de cette zone, un module est ajouté pour installer un piège opto-magnétique à deux dimensions.

Nous utilisons un système à 8 bars en cuivre pour produire le champ magnétique quadripolaire nécessaire au piège. La figure I-4-3 montre une vue en trois dimensions de ce dispositif. Cette pièce est réalisée à partir d'un seul cylindre de cuivre massif sans aucune soudure. Sa conception et son usinage par l'équipe technique du Laboratoire Aimé Cotton sont des véritables exploits.

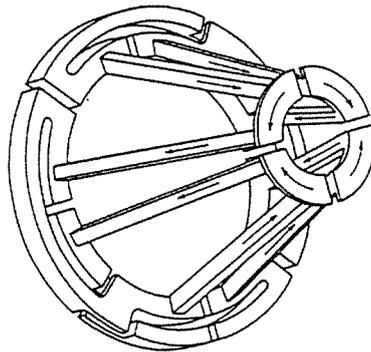


Fig. I-4-3. Dispositif créant le champ magnétique quadripolaire du piège.

Les 8 bars sont regroupés deux à deux en quatre paires, chaque paire porte un courant qui circule dans le sens opposé de ses voisines. A l'entrée du piège, les 8 bars sont fixés sur un anneau de 60 mm de diamètre, à la sortie ils convergent sur un anneau de 20 mm de diamètre. Les bars ont une longueur de 60 mm et une section de $3 \times 3 \text{ mm}^2$. Ils supportent un courant continu jusqu'à 100 A. Le champ magnétique créé par cette 'bobine' peut être calculé numériquement, la figure I-4-4 montre le gradient transversal du champ sur l'axe du piège en fonction de la distance longitudinale pour un courant de 50 A. Dans ce montage, un jet atomique traversant le piège verra un gradient de champ augmenter, ce qui permet d'avoir une large capture à l'entrée et une forte concentration à la sortie.

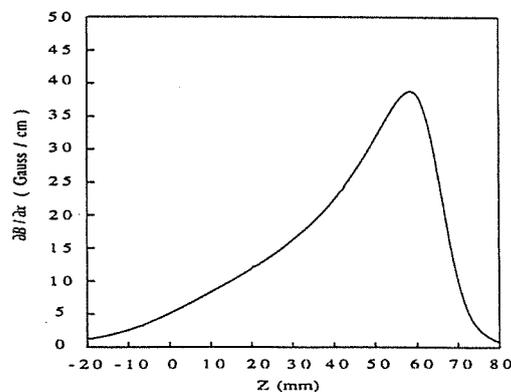


Fig. I-4-4. Gradient transversal du champ magnétique en fonction de la distance longitudinale .

Les faisceaux laser proviennent d'une diode de puissance de 150 mW (SDL-5422) asservie par injection sur une diode maître stabilisée en cavité externe. Une séparatrice permet d'avoir les deux faisceaux dans les deux axes. Le faisceau contre-propageant est renvoyé par un miroir et sa polarisation tournée par une lame $\lambda/4$. Un télescope cylindrique est utilisé pour obtenir une section des faisceaux de 50 mm x 6 mm (largeur x hauteur). L'intensité moyenne dans chaque faisceau est de $3,5 \text{ mW/cm}^2$.

La figure I-4-5 montre dans les deux coupes le piège opto-magnétique.

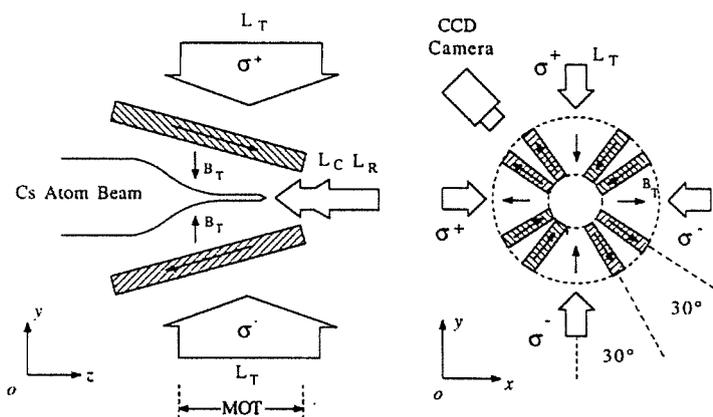


Fig. I-4-5. Présentation du piège opto-magnétique dans les deux plans.

Dans le plan yOz on voit le jet atomique et les faisceaux laser de refroidissement longitudinal : L_C faisceau de refroidissement et L_R faisceau de repompage. Le piège a une longueur de 40 mm qui couvre une zone où le gradient de champ magnétique varie de 15 à 40 Gauss/cm pour un courant de 50 A: Une partie de chaque faisceau de piège (10 mm) déborde la zone de piège pour former une mélasse dans une région à faible champ magnétique. Cette mélasse permet un refroidissement supplémentaire à la sortie du piège. Dans le plan xOy on voit les quatre faisceaux laser, les huit bars avec les sens de courant sur chaque bar et une caméra CCD qui observe la fluorescence du piège entre deux bars.

I.4.2.c Observation de l'effet de l'entonnoir

Un cycle de compression commence par la phase de refroidissement longitudinal. Cette phase est décrite en détail dans le chapitre I.1. A la fin de cette période qui dure une dizaine de ms, une colonne d'atomes froids d'une longueur environ 1 m est produite. La vitesse moyenne peut être ajustée par la fin de la rampe de refroidissement. La dispersion résiduelle autour de la vitesse moyenne est de $\pm 4 \text{ m/s}$. Le faisceau de refroidissement est alors décalé loin de la résonance par un saut de fréquence de 400 MHz ($80 \times \Gamma / 2\pi$). Mais le faisceau de repompage est maintenu à sa fréquence de la fin de rampe pour assurer un repompage dans le piège. La colonne d'atomes froids traverse le piège pendant une dizaine de ms. La compression est observée avec la caméra CCD. La figure I-4-6 montre une image vidéo typique de la compression. La vitesse longitudinale du jet est de 35 m/s. On voit que le jet initialement de quelques mm de diamètre est compressé à la sortie du piège à un diamètre que l'on estime à $200 \mu\text{m}$. On peut définir une distance de compression d_p , qui est celle entre l'entrée du piège et le point où le jet est compressé à son diamètre final. En comparant l'intensité de fluorescence dans le jet compressé et celle dans un jet sans compression, on peut estimer la densité atomique dans le jet compressé à l'ordre 10^9 cm^{-3} , ce qui est 100 fois plus dense qu'un jet sans compression.

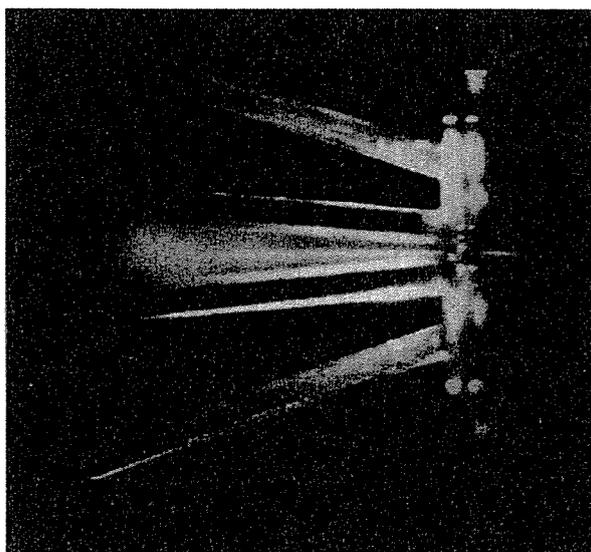


Fig. I-4-6. Image CCD de la compression d'un jet de césium monocinétique de vitesse 35 m/s. Le jet va de gauche à droite. A la sortie du piège le jet comprimé est visible éclairé par une portion des faisceaux de piège.

La distance de compression d_p est mesurée en fonction de la vitesse longitudinale du jet atomique. Les cercles vides sur la figure I-4-7 montrent le résultat pour un piège normal.

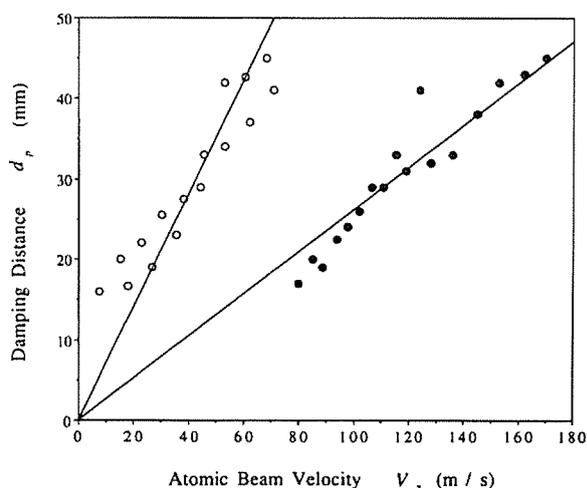


Fig. I-4-7. La distance de compression en fonction de la vitesse longitudinale du jet atomique. Les cercles vides : piège normal avec le faisceau de refroidissement décalé en fréquence loin de la résonance pendant la compression (80Γ côté bleu). Les points noirs : piège assisté par un pompage Zeeman avec le faisceau de refroidissement décalé de $3,5\Gamma$ vers le côté bleu (voir le texte plus loin).

Les points expérimentaux sont ajustés par une droite passant par l'origine. La pente de cette droite donne le temps de compression τ . Pour les cercles vides, on trouve un temps de compression de $720 \mu\text{s}$. Sachant que dans le piège, le gradient de champ magnétique varie entre 15 et 40 Gauss/cm, la valeur de τ mesurée est plus grande que celle donnée par une estimation à partir un modèle de transition V à trois niveaux. On peut penser qu'ici il s'agit d'une manifestation du caractère multi-V de la transition.

I.4.2.d Force de piège dépendante de la valeur m_F dans un système multi-V

A partir de la figure I-4-2, on voit que chaque système de transition V a des coefficients Clebsch-Gordan différents en fonction du niveau de départ m_F . Il existe notamment un déséquilibre important entre les transitions σ^+ et σ^- sauf pour le sous-niveau $m_F = 0$.

On réécrit la force de piège opto-magnétique en incluant les coefficients Clebsch-Gordan $C_{\pm}(m_F)$ dont les valeurs sont données sur la figure I-4-2:

$$F_{\pm}(m_F, x, v) = \pm \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{C_{\pm}^2(m_F) I / I_0}{1 + C_{\pm}^2(m_F) I / I_0 + [2(\Delta \mp \Omega_L(x) \mp kv) / \Gamma]^2}$$

Les forces totales pour tous les niveaux m_F sont tracées sur la figure I-4-8, avec une intensité $I = I_0$, un désaccord $\Delta = -\Gamma$, un gradient de champ magnétique $\partial B / \partial x = 40$ Gauss/cm et une vitesse transversale des atomes $v = 0$.

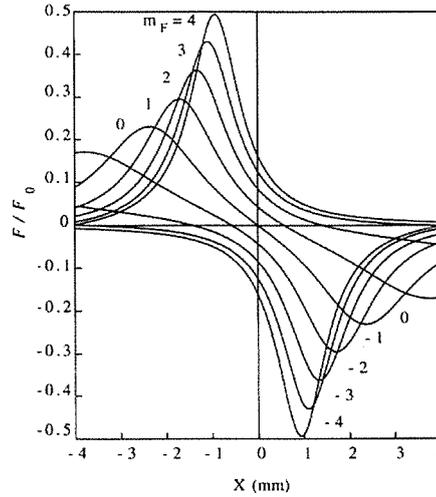


Fig. I-4-8. La force de piège en fonction du déplacement autour du centre pour tous les sous-niveaux m_F du fondamental.

Considérons un atome se trouvant à un déplacement positif où le champ magnétique est positif, la force exercée sur lui selon son état m_F sera très attractive ($m_F = -4$), moins attractive ($m_F = -3, -2, -1, 0, 1$ et 2) voire répulsive ($m_F = 3$ et 4). Le sous-niveau $m_F = -4$ est donc le niveau le plus favorable pour la compression. Remarquons que dans ce niveau le moment cinétique total est antiparallèle au champ magnétique local, et l'énergie d'interaction Zeeman est minimale. Le même raisonnement s'applique à un atome se trouvant à un déplacement négatif où le champ magnétique est négatif. Dans ce cas-là, le sous-niveau le plus favorable à la compression devient $m_F = +4$. Remarquons ici encore que dans ce niveau le moment cinétique total est antiparallèle au champ magnétique local.

Il y a une deuxième raison pour que la force soit dépendante du sous-niveau. Les fréquences de Larmor sont différentes pour le niveau fondamental que pour le niveau excité : $\Omega_L = 2\pi \times 350$ kHz/Gauss pour $F = 4$ (facteur $g = 1/4$) et $\Omega_L' = 2\pi \times 560$ kHz/Gauss pour $F' = 5$ (facteur $g = 2/5$). Les désaccords effectifs pour les différentes transitions V au départ de différents sous-niveaux m_F sont donc différents :

$$\Delta_{\pm}(x, m_F) = \omega_L - \left\{ \omega_0 + \left(-\frac{\mu_B B(x)}{\hbar} \right) [(m_F \pm 1)g_F' - m_F g_F] \right\},$$

On peut récrire :

$$\Delta_{\pm}(x, m_F) = \Delta_0 - \left(-\frac{\mu_B B(x)}{\hbar} \right) [(m_F \pm 1)g_F' - m_F g_F],$$

ou encore : $\Delta_{\pm}(x, m_F) = \Delta_0 - B(x) \left(\frac{3}{20} m_F \pm \frac{2}{5} \right) (2\pi \times 1,4 \text{ MHz})$.

Pour un désaccord Δ_0 négatif, si le déplacement est positif (donc B positif) une valeur de m_F négative réduit le désaccord et rapproche le laser de la résonance atomique. Le même raisonnement s'applique pour un déplacement négatif, mais cette fois-ci une valeur positive de m_F conduit à un couplage plus fort entre le laser et l'atome. La figure I-4-9 illustre cette situation.

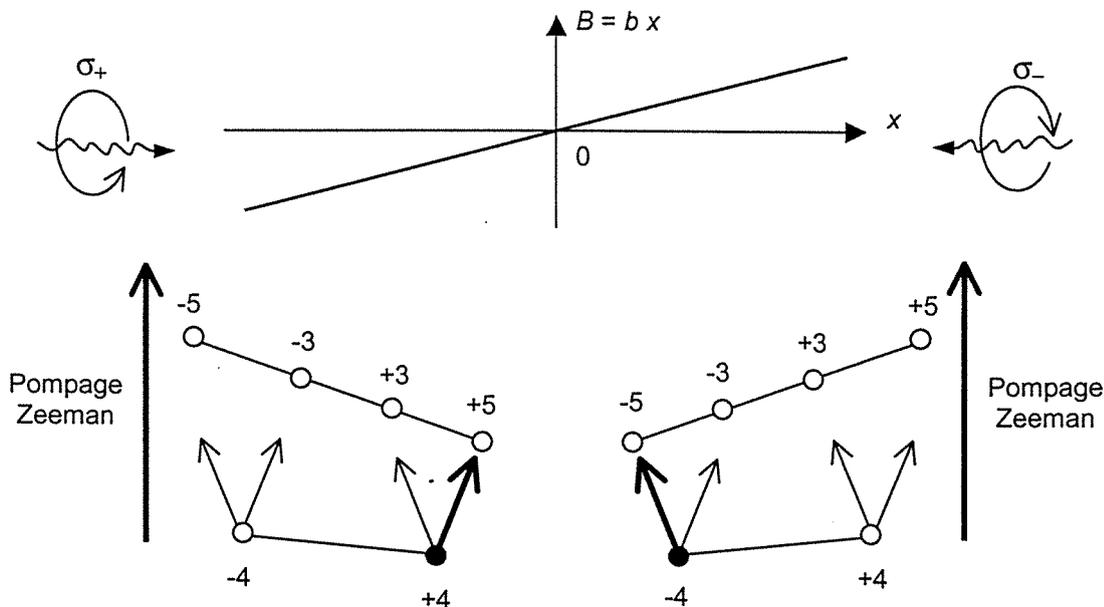


Fig. I-4-9. Désaccords effectifs pour les différentes transitions V au départ de différents sous-niveaux m_F .

En partant d'un mélange statistique parmi tous les sous-niveaux Zeeman, les faisceaux du piège polarisés σ^+ et σ^- ont tendance à regrouper, par le pompage optique, la population atomique vers les deux niveaux Zeeman d'extrémité : $m_F = -4$ pour $x > 0$ et $m_F = +4$ pour $x < 0$. Pendant ce temps-là la force de compression n'est pas optimale. Et on dit que la compression est dans un régime transitoire. Il est clair que préparer ou orienter les atomes dans les bons sous-niveaux optimise la force de piège et raccourcit le temps de compression. Nous allons présenter par la suite deux méthodes d'orientation.

Une simulation avec la méthode Monte Carlo confirme la dépendance en m_F de la force de piège. La figure I-4-10 montre deux trajectoires correspondantes à deux atomes se trouvant initialement l'un dans le sous-niveau $m_F = -4$ et l'autre dans le sous-niveau $m_F = +4$.

I.4.2.e Piège opto-magnétique assisté par un pompage Zeeman

La figure I-4-9 nous suggère que si l'on applique un faisceau de polarisation π_x avec un désaccord bleu, les transitions dont les fréquences sont plus élevées seront excitées davantage. Par pompage optique, la population atomique va être regroupée vers les sous-niveaux Zeeman plus favorables pour la compression : $m_F = -4$ pour $x > 0$ et $m_F = +4$ pour $x < 0$.

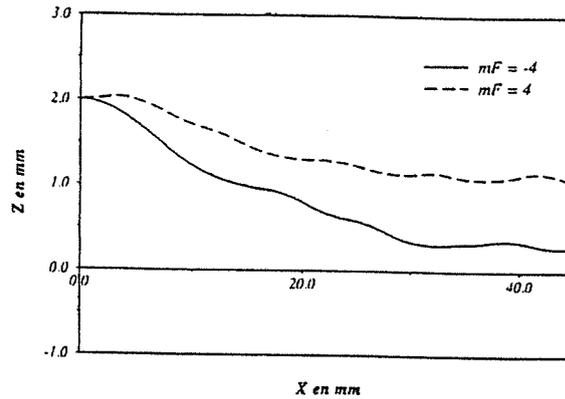


Fig. I-4-10. Simulation Monte Carlo des trajectoires atomiques dans le piège pour deux atomes se trouvant initialement l'un dans le sous-niveau $m_F = -4$ et l'autre dans le sous-niveau $m_F = +4$. Les paramètres utilisés sont : $l/l_0 = 3$, $\Delta = -2 \Gamma$, $\partial B/\partial x = 15$ Gauss/cm et la vitesse longitudinale $v_z = 25$ m/s.

Nous utilisons le faisceau de refroidissement (polarisation σ_z) pour le pompage Zeeman. Au lieu de le décaler très loin de la résonance, on lui applique un décalage de $3,5\Gamma$ du côté bleu pendant la période du piège. La distance de compression mesurée dans cette configuration est montrée par les points noirs dans la figure I-4-7. La pente de la droite d'ajustement donne un temps de compression $\tau = 260 \mu\text{s}$. Cette valeur se rapproche de celle prédite par le modèle à trois niveaux : $\tau = \frac{4190}{\partial B/\partial x|_{x=0}} (\mu\text{s}) = 210 \mu\text{s}$ pour un gradient de 20

Gauss/cm. Avec un temps de compression réduit, un jet à vitesse longitudinale plus élevée peut être comprimé par notre piège. Ainsi on a observé la compression jusqu'à une vitesse de 170 m/s. Par contre, pour des vitesses longitudinales plus faibles que 70 m/s, le faisceau de pompage Zeeman introduit une diffusion transversale trop importante à cause d'un temps de transit plus long des atomes dans le piège. Cette diffusion réduit l'effet du piège. La figure I-4-11 montre les profils du jet comprimé à la sortie du piège assisté par pompage Zeeman (b) comparés à ceux obtenus avec un piège normal (a).

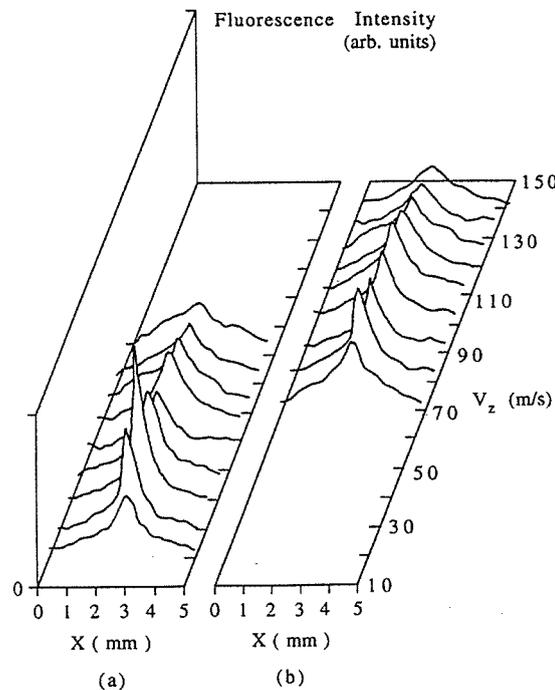


Fig. I-4-11. Profils du jet comprimé à la sortie du piège : (a) pour un piège normal ; (b) pour un piège assisté par pompage Zeeman.

I.4.2.f Pré-orientation par transfert adiabatique

On peut aussi préparer les atomes en les orientant antiparallèle au champ magnétique ($m_F = -4$) avant qu'ils n'entrent dans le piège. On ajoute dans ce cas-là un champ magnétique (~ 1 Gauss) longitudinal, B_z , qui fixe la direction de quantification. Et on utilise le faisceau de refroidissement en polarisation σ^+ (N.B. cette polarisation devient σ^- par rapport au champ magnétique B_z). A l'entrée du piège, le champ magnétique B_z se superpose au champ du piège et le champ total devient progressivement transversal (Fig. I-4-12). A la fin de la période du refroidissement longitudinal, les atomes sont pompés dans le sous-niveau ($m_F = -4$)_z. Si les atomes entrent dans le piège en gardant leur moment cinétique toujours aligné sur le champ magnétique local (passage adiabatique), ils se trouvent préparés dans les sous-niveaux les plus favorables à la compression dans le piège. A la fin du refroidissement longitudinal, la fréquence du faisceau de refroidissement longitudinal est décalée loin de la résonance (80Γ).

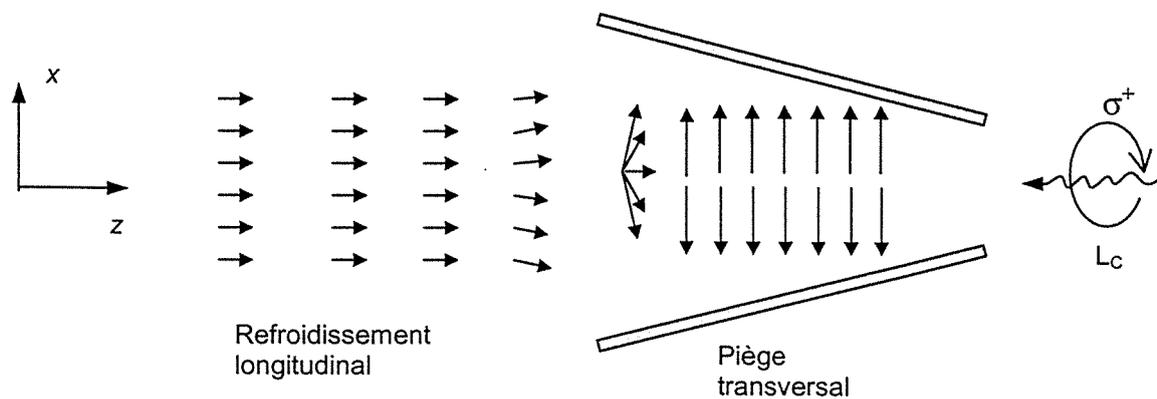


Fig. I-4-12. Variation du champ magnétique depuis la zone du refroidissement longitudinal et dans le piège transversal.

La figure I-4-13 montre les profils du jet compressé à la sortie du piège avec le faisceau de refroidissement longitudinal polarisé en σ^- (a) et en σ^+ (b). L'effet de pré-orientation est clairement observé.

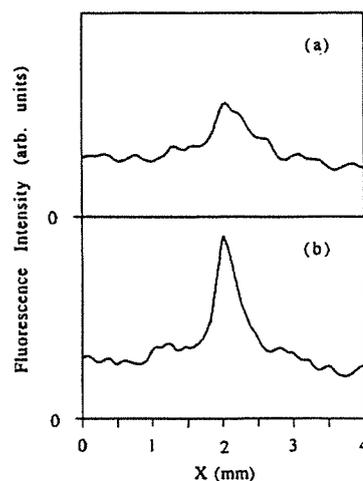


Fig. I-4-13. Profils du jet compressé avec les deux polarisation du faisceau de refroidissement longitudinal : (a) σ^- et (b) σ^+ .

I.4.3 Conclusion

En conclusion, nous avons pendant la période de 92-93 au Laboratoire Aimé Cotton, réalisé un piège opto-magnétique à deux dimensions pour l'atome de césium. C'était le premier entonnoir pour cet atome. Nous avons démontré le caractère transitoire de la compression dans un système atomique à transitions multi-V et l'effet d'une orientation des atomes soit par un pompage Zeeman soit par un transfert adiabatique pour améliorer l'efficacité du piège.

Références :

1. Voir par exemple l'article de revue : P.D. Lett, W.D. Phillips, S. L. Rolston , C.E. Tanner, R.N. Watts, and C.I. Westbrook, « Optical molasses », *J.O.S.A. B* **6**, 2084 (1989).
2. A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 729 (1978).
3. V.S. Letokhov and Minogin, *Appl. Phys.* **17**, 99 (1978).
4. R.J. Cook, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 976 (1980).
5. J. Dalibard, S. Reynaud and C. Cohen-Tannoudji, « Proposals of stable optical traps for neutral atoms », *Optics Commun.* **47**, 395 (1983).
6. E.L. Raab, M. Prentiss, Alex Cable, Steven Chu, and D.E. Pritchard, « Trapping of neutral sodium atoms with radiation pressure », *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2631 (1987).
7. C. Monroe, W. Swann, H. Robinson, and C. Wieman, « Very cold atoms in a vapor cell », *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1571 (1990).
8. A.M. Steane and C.J. Foot, « Laser cooling below the Doppler limit in a magneto-optical trap », *EuroPhys. Lett.* **14**, 231 (1991).
9. Erling Riis, David S. Weiss, Kathryn A. Moler, and Steven Chu, « Atom funnel for the production of a slow, high-density atomic beam », *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1658 (1990).
10. J. Nellessen, J. Werner and W. Ertmer, « Magneto-optical compression of a monoenergetic sodium atomic beam », *Optics Commun.* **78**, 300 (1990).

Nos publications sur ce travail :

1. P. Pillet, J. Yu, J. Djemaa and P. Nosbaum, « Transversal magneto-optical compression of a frequency-chirping slowed cesium atomic beam », *Laser Spectroscopy, XIth International conference*, Ed. L. Bloomfield, Th. Gallagher, D. Larson, AIP Press, American Institut of Physics, New York, 73 (1993).
2. J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum and P. Pillet, « Funnel with orientated Cs atoms », *Opt. Commun.* **112**, 136 (1994).

Thèse soutenue sur ce travail dans notre équipe :

Jouda Djemaa, « Entonnoir à atomes : Etude expérimentale et théorique de la compression transverse par piège magnéto-optique d'un jet atomique de césium ralenti et refroidi par laser », Université Paris-Sud, Orsay (1995).

Deuxième Partie

Développement de Lasers : de l'Ultra-Stable à l'Ultra-Court

Chapitre II.1

Diodes Laser Ultra-Stables

II.1.1 Introduction

II.1.1.a Utilisation des diodes laser dans la physique atomique

L'avènement du laser à colorant au milieu des années soixante a influencé d'une manière décisive sur la direction de la physique moderne. La spectroscopie laser a permis une connaissance en détail de la structure des atomes, des molécules et même sur certains aspects de la structure nucléaire. Mais les physiciens ont du payer cette énorme contribution du laser à colorant en acceptant de nombreux désavantages inhérents à cet instrument : un prix élevé, une maintenance lourde et fastidieuse avec le changement de colorant et l'alignement des optiques, et pour le laser de pompe ionique le besoin d'une ligne à haute tension et un circuit de l'eau de refroidissement.

Les diodes laser, au contraire, présentent des caractéristiques qui séduisent les physiciens : faible coût, sans alignement ni maintenance, compacte et facile à installer donc pas besoin d'infrastructure laboratoire spéciale. Elles sont considérées comme une alternance au laser à colorant tant qu'une puissance élevée et une courte longueur d'onde ne soient pas nécessaires.

Historiquement les diodes lasers sont inventées avant le laser à colorant. Dès 1962 les premiers lasers à semi-conducteur ont fonctionné dans de différents laboratoires, mais dans des conditions telles, fonctionnant à la température de l'azote liquide avec une puissance de sortie très faible et une fiabilité aléatoire, que leur utilisation est peu attrayante et reste marginale. Il faut attendre, vers la fin des années soixante-dix, l'apparition des diodes laser monomode fonctionnant à la température ambiante, pour que l'utilisation des diodes laser prenne un grand essor. On peut cependant distinguer deux périodes dans l'utilisation des diodes laser modernes : diodes laser monomode en fonctionnement libre ; et diodes laser stabilisées par un couplage avec un élément optique externe. C'est vers la fin des années quatre-vingt que des diodes laser stabilisées ont progressivement remplacé des diodes laser simples dans des laboratoires de recherche. D'abord développées par des physiciens, des diodes stabilisées sont depuis quelques années disponibles commercialement.

L'utilisation dans la physique atomique des diodes laser, notamment celles en AlGaAs émettant entre 750 nm et 890 nm, est très vaste. Elle couvre la physique atomique fondamentale avec la mesure de la violation de parité ou celle du déplacement lumineux, la spectroscopie, le pompage optique, l'horloge atomique, le refroidissement laser et plus récemment, la production du condensat de Bose-Einstein. Outre les avantages cités ci-dessus, une fréquence très stable associée à une largeur de raie extrêmement faible et une accordabilité raisonnable (bien que pas très large) sont les caractéristiques les plus attractives. Dans la littérature on peut trouver des articles de revue qui résument l'utilisation des diodes laser dans la physique atomique, par exemple celui de J.C. Camparo écrit en 1985 ¹ ou celui de Carl E. Wieman et Leo Hollberg écrit en 1991 ². Aujourd'hui plus d'une décennie après que les premières diodes laser stabilisées étaient construites dans les laboratoires, les applications se sont largement développées et diversifiées. La commercialisation de ces sources laser performantes et fiables permet un accès aux non-spécialistes et ouvre un large champ d'applications.

II.1.1.b Utilisation et développement des diodes laser au Laboratoire Aimé Cotton

Le Laboratoire Aimé Cotton est l'un des pionniers dans l'utilisation des diodes laser. Entre le milieu et la fin des années soixante-dix, Jean-Louis Picqué en collaboration avec M. Arditi de l'Institut d'Electronique Fondamentale à Orsay ont réalisé une série d'expériences avec des diodes laser opérant à une basse température. Ces expériences portaient sur le pompage

optique d'une vapeur³ ou d'un jet⁴ de césium ; la mesure du décalage lumineux⁵ dans l'atome de césium et l'utilisation de celui-ci pour asservir la fréquence d'une diode laser⁶ ; et aussi l'horloge atomique à pompage optique⁷.

Je me suis joint l'équipe de Jean-Louis Picqué au Laboratoire Aimé Cotton en septembre 1988, il montait une expérience de refroidissement d'un jet atomique de césium en collaboration avec André Clairon du Laboratoire Primaire du Temps et des Fréquences à l'Observatoire de Paris. Initialement des diodes AlGaAs en fonctionnement libre sont utilisées dans l'expérience. Au fur et à mesure, nous avons développé des diodes laser stabilisées pour améliorer les résultats ou pour s'adapter aux nouvelles expériences. A mon départ du laboratoire en septembre 1994, nos expériences ont été entièrement équipées des systèmes de diodes laser stabilisées développées au laboratoire, avec lesquelles nous avons obtenu une grande quantité de résultats, comme exposés en première partie de ce mémoire. Et je suis particulièrement heureux et fier d'apprendre qu'aujourd'hui, six ans plus tard, les systèmes que nous avons développés à l'époque fonctionnent toujours.

J'aimerais ici souligner l'aide généreuse et indispensable que nous a apportée André Clairon dans les développements de nos systèmes de diodes laser. C'est un véritable Maître sssnon seulement dans le domaine des diodes laser mais aussi dans beaucoup d'autres domaines que j'ai eu la chance de côtoyer.

II.1.1.c Atome de césium et diodes laser AlGaAs

L'atome de césium est l'un des alcalins qui possède néanmoins un statut spécial. En effet la seconde est définie à partir de la transition micro-onde entre les deux niveaux hyperfins fondamentaux du césium. L'étude de cet atome intéresse au premier lieu les chercheurs et les ingénieurs travaillant à la mise au point des horloges atomiques de plus en plus précises et stables.

A la fin des années quatre-vingt, on peut trouver des diodes laser AlGaAs commerciales initialement développées pour la première génération de liaison optique. Car la fibre optique a une absorption minimale autour de 830 nm. Mais la production industrielle de ces diodes présente une dispersion en longueur d'onde. Une des ailes de cette dispersion couvre la longueur d'onde de 852 nm. C'est ce recouvrement qui fait le bonheur des physiciens atomistes travaillant avec l'atome de césium dont la raie d'absorption D₂ se trouve à 852,124 nm.

Certains fabricants de diodes laser, comme HITACHI au Japon, acceptent, au prix de quelques milliers de francs par diode, d'effectuer un tri parmi un lot de diodes de celles qui veulent bien aller à 852 nm avec un courant et une température raisonnables. Ces diodes (HITACHI-1400), avec une structure de double hétérojonction guidée par indice, fournissent typiquement 15 mW monomode avec une largeur spectrale d'environ 15 MHz pour un courant d'une centaine de mA. Quelques années plus tard, début des années quatre-vingt-dix, la situation évoluait, on n'arrive plus à se procurer des diodes HITACHI. Le tri était devenu trop difficile à cause d'une amélioration du procédé de fabrication qui conduisait à une diminution de la dispersion en longueur d'onde.

Heureusement d'autres fabricants, comme STC en Angleterre ou SDL aux Etats-Unis, proposaient des diodes de structure en multi-puits quantiques guidée par indice, qui peuvent fonctionner à 852 nm avec une meilleure efficacité. Les diodes STC (LT50A03U, 4000 FF/diode) fournissent 50 mW pour un courant d'une centaine de mA. Les diodes SDL (SDL-5412-H1 ou SDL-5422-H1, 15000 FF/diode) fournissent 100 ou 150 mW pour un courant de 150 ou 200 mA. La largeur spectrale de ces diodes est typiquement de 15 MHz comparable aux diodes HITACHI. Cette largeur est donc supérieure à la largeur naturelle de la raie D₂ du césium (5,22 MHz) et la largeur spectrale typique d'un laser à colorant (1 MHz). Pourtant

intrinsèquement une diode laser devrait être plus stable qu'un laser à colorant grâce à la compacité de sa cavité.

II.1.1.d Largeur spectrale d'une diode laser

La largeur spectrale d'une diode laser peut-être exprimée par la formule suivante^{8,9} :

$$\Delta\nu = \frac{h\nu n_{sp} v_g^2 (\log(1/R))^2}{8\pi \zeta P_0 L^2} (1 + \alpha^2),$$

où

– $n_{sp} = \frac{N_2}{N_2 - N_1}$ est un facteur caractérisant l'inversion de population dans un système à deux niveaux (le niveau fondamental 1, le niveau excité 2) ;

– v_g est la vitesse de groupe ;

– R est le coefficient de réflexion en intensité des facettes de la diode ;

– ζ est l'efficacité quantique définie comme le rapport du nombre de photons s'échappant de la cavité par seconde sur le nombre de photons créés par seconde, remarquons que ce dernier, égal au gain dans la cavité, est égal à la perte totale de la cavité à l'état

stationnaire : $\zeta = \frac{v_g a_m}{v_g (a_m + a_{int})}$, avec a_m et a_{int} les coefficients de perte sur les miroirs et à

l'intérieur de la cavité ;

– P_0 est la puissance émise par chaque facette de la diode ;

– L est la longueur de la cavité diode ;

– α est le coefficient de couplage phase amplitude, défini comme le rapport entre la partie réelle de la variation de la susceptibilité due au pompage par injection de courant $\delta\chi$, et sa partie imaginaire : $\alpha = -\frac{Re(\delta\chi)}{Im(\delta\chi)}$, qui peut être relié en fait au rapport entre les variations

de l'indice réel η_R et du gain g par rapport à la densité de porteurs n : $\alpha = -2k_0 \frac{\partial \eta_R / \partial n}{\partial g / \partial n}$.

Il est clair qu'un coefficient de réflexion faible ($\sim 0,3$) et une longueur de cavité courte ($\sim 300\mu\text{m}$) conduisent à une cavité à facteur de surtension Q faible et à une largeur spectrale importante chez les diodes laser. Cette largeur est en plus augmentée par le factor α , qui dépend de la structure de diodes et prend une valeur entre 1,5 et 6 pour les diodes AlGaAs. Un calcul donne une valeur typique de $\sim 100 \text{ MHz/ mW}$.

Dans la suite de ce paragraphe, les différentes techniques de stabilisation que nous avons employées au Laboratoire Aimé Cotton sont présentées. Elles s'agissent du couplage avec une cavité Fabry-Perot, de la diode laser à cavité externe, et du blocage de mode par injection.

II.1.2 Couplage optique résonant avec une cavité Fabry-Perot confocale

Dans cette méthode, une réflexion en provenance d'une cavité Fabry-Perot confocale de grande finesse est réinjectée dans la diode laser^{9,10,11}. On obtient une largeur spectrale extrêmement réduite grâce à l'augmentation du temps de stockage de l'énergie optique à l'intérieur de l'ensemble des cavités couplées.

II.1.2.a Montage

La figure II-1-1 montre notre système de laser couplé à une cavité Fabry-Perot.

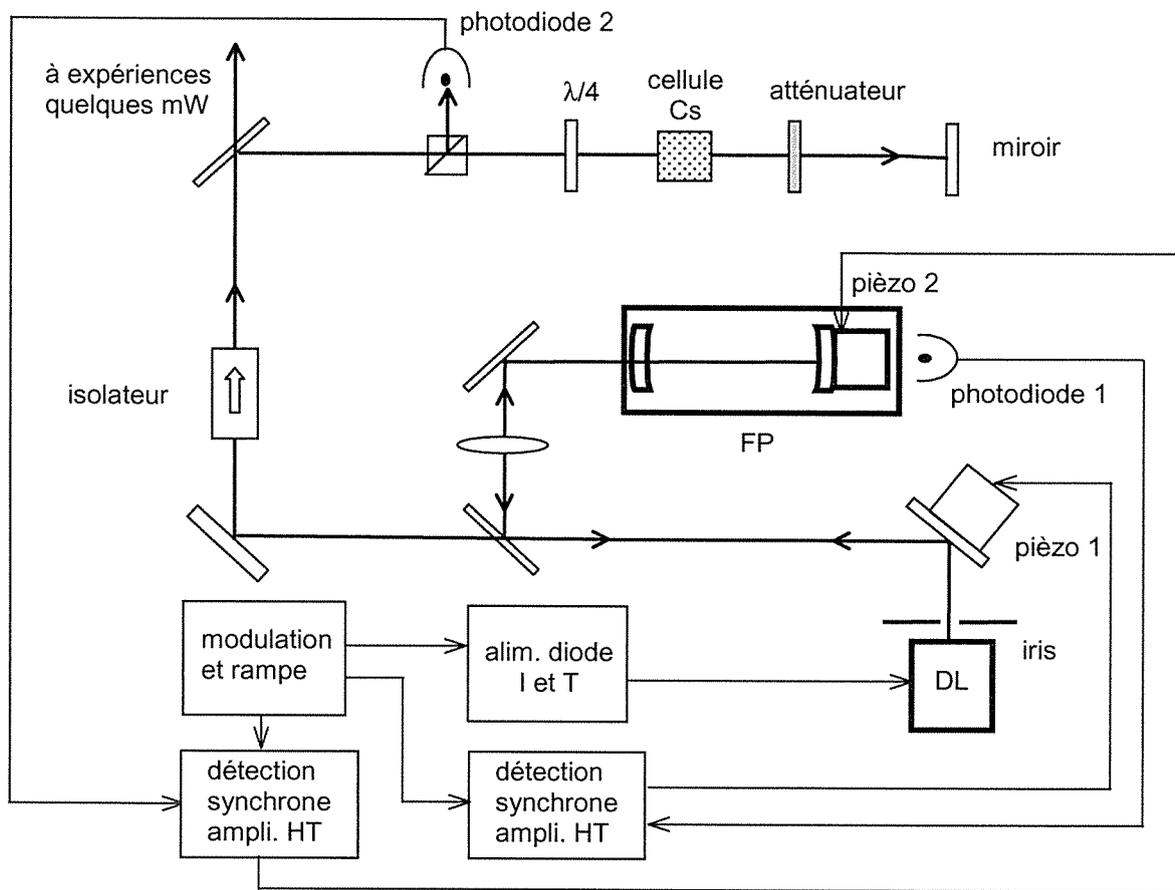


Fig. II-1-1. Montage d'une diode laser couplée à une cavité Fabry-Perot.

Une partie ($\sim 10\%$) du faisceau issu d'une diode laser (HITACHI-1400) est prélevée par une séparatrice, et injectée dans une cavité Fabry-Perot en Invar à l'aide d'une lentille et des miroirs. Le Fabry-Perot est constitué de deux miroirs sphériques de rayon de courbure 100 mm et traités haute réflexion à 852 nm. La distance entre les miroirs est de 100 mm, ce qui conduit à un intervalle spectral libre de 750 MHz. Le miroir sphérique du fond est collé sur une cale piézo-électrique (piézo 2). Une haute tension permet de déplacer ce miroir et décaler la résonance du Fabry-Perot. La transmission du Fabry-Perot est visualisée à l'aide d'une photodiode. Sa finesse est mesurée à 20. La lentille est utilisée pour l'adaptation du mode spatial du faisceau laser dans le Fabry-Perot. Une autre cale piézo-électrique (piézo 1) montée derrière le miroir de renvoie permet un positionnement précis de celui-ci. Un iris contrôle l'intensité lumineuse rétro-injectée dans le Fabry-Perot. Un des deux faisceaux réfléchis du Fabry-Perot est réinjecté dans la diode laser en remontant le chemin optique. Ce faisceau a une intensité maximale à la résonance.

Le faisceau transmis de la séparatrice passe à travers une deuxième séparatrice où une partie de celui-ci ($\sim 10\%$) est prélevée et orientée vers une ligne d'absorption saturée composée d'une cellule de césium et un miroir. Une photodiode détecte l'intensité du faisceau de sonde renvoyé par le miroir. La transmission de la deuxième séparatrice constitue la sortie

du système de diode laser stabilisée et est utilisée par des expériences. Un isolateur optique est utilisé pour couper des retours parasites.

Une électronique de contrôle et d'asservissement développée au laboratoire assure le fonctionnement de l'ensemble du système : stabilisation de la température, ajustement du courant de la diode laser et contrôle des deux cales piézo-électriques. Deux boucles d'asservissement assurent le couplage entre la diode et le Fabry-Perot et la stabilité à long terme du laser. La première utilise le signal délivré par la photodiode 1, le signal d'erreur généré par rapport au sommet de la courbe de transmission du Fabry-Perot est appliqué sur le piézo 1. Cet asservissement a pour but de maintenir le système à la résonance du Fabry-Perot en ajustant la phase de l'onde réinjectée dans la diode (phase-matching). La deuxième boucle d'asservissement utilise le signal délivré par la photodiode 2. Le signal d'erreur généré par rapport au signal d'absorption saturée est appliqué sur le piézo 2, ce qui permet de stabiliser la résonance du Fabry-Perot. Cet asservissement peut être statique, dans ce cas-là le Fabry-Perot est bloqué sur une des composantes hyperfines de la raie D_2 . Un asservissement dynamique est aussi possible, dans ce cas-là trois rampes synchronisées sont appliquées respectivement au courant diode et aux deux piézos. Les amplitudes des rampes sont ajustées pour que les écarts entre les paramètres restent minimaux au cours d'un balayage. Les asservissements compensent les écarts résiduels. Pour assurer une reproductibilité des balayages à long terme, un signal d'erreur est généré en comparant le début (ou la fin) de chaque rampe à un pic d'absorption saturée. Ce signal d'erreur est appliqué au piézo 2 pour ajuster l'off-set du balayage.

II.1.2.b Résultats

Pour aligner le couplage entre la diode laser et le Fabry-Perot, la fréquence de la diode est modulée par une rampe de courant. On visualise alors la transmission du Fabry-Perot sur un oscilloscope. Lorsque le couplage est optimisé, la courbe de transmission est complètement modifiée, on observe une courbe sous la forme d'une cloche (Fig. II-1-2).

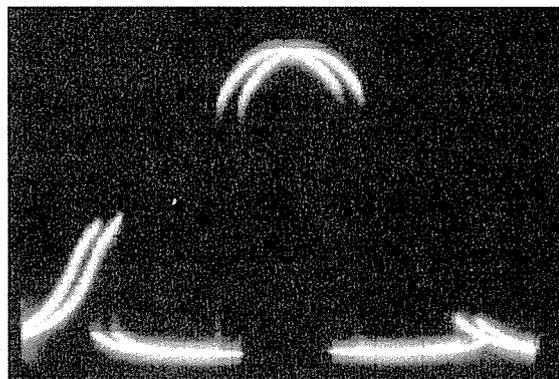


Fig. II-1-2. Courbe de transmission du Fabry-Perot d'une diode laser couplée à celui-ci, en fonction du courant diode.

Cette courbe en cloche peut être calculée théoriquement. On reproduit en figure II-1-3 un résultat de la référence 9 montrant pour deux taux de couplage, la fréquence du laser couplé d'une part et la transmission Fabry-Perot d'autre part en fonction de la fréquence de la diode libre. On voit notamment que la forme en cloche est due au blocage de la fréquence libre sur une résonance du Fabry-Perot confocal (ν_{FPC}). En effet, sur une plage autour de ν_{FPC} la fréquence du laser couplé est stabilisée malgré une variation de la fréquence libre. Ceci

correspond à une réduction de bruit spectral. L'inverse de la pente du segment de courbe aplati donne le facteur de réduction en largeur spectrale. Ce facteur est calculé à une valeur de 500 dans la référence 9 pour des paramètres typiques, ce qui permet d'obtenir à partir d'une largeur spectrale libre de 15 MHz, une largeur de 30 kHz. Pour un taux de couplage plus élevé, la plage d'accrochage s'élargit. On remarque aussi la forme de la courbe de transmission en cloche dépend de la phase de l'injection, qui dépend de la distance entre la diode et le Fabry-Perot et peut être ajustée par le piézo 1. Cette forme devient asymétrique par rapport à la résonance du Fabry-Perot si cette phase n'est pas bien ajustée.

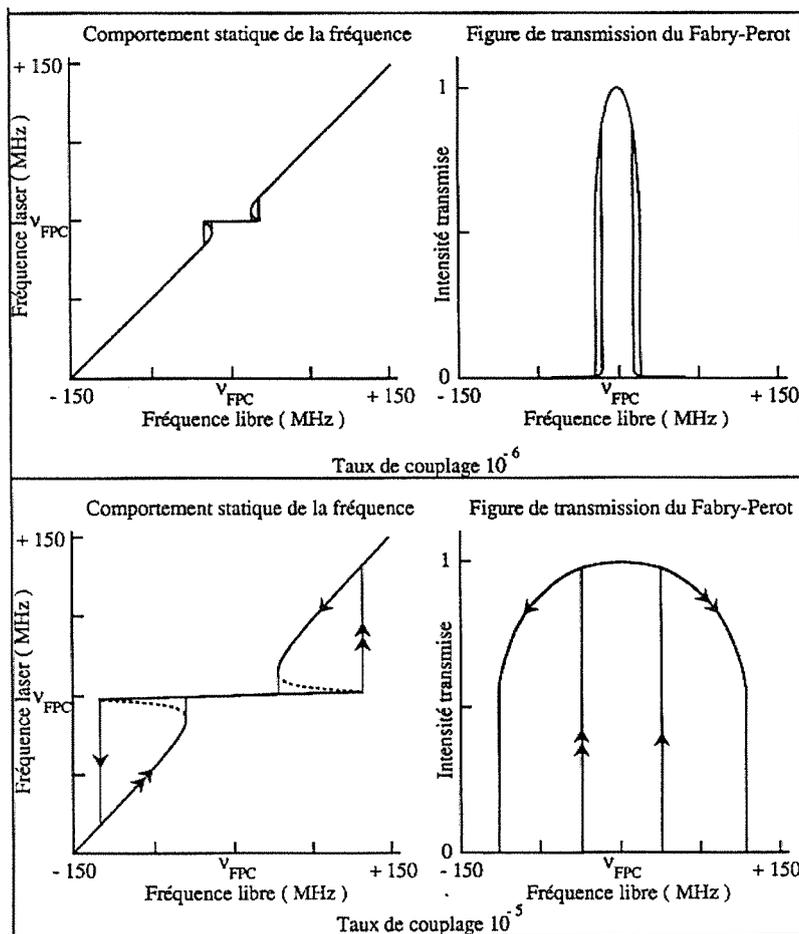


Fig. II-1-3. Calculs théoriques : fréquence du laser couplé et courbe de transmission du Fabry-Perot en fonction de la fréquence d'une diode libre. (courbes extraites de la référence 9)

Avec la pureté spectrale d'un laser couplé, les composantes hyperfines de la raie D_2 peuvent être résolues avec un très bon signal sur bruit. La figure II-1-4 montre les spectres d'absorption saturée pour les multiplets à partir des deux niveaux hyperfins du fondamental obtenu lorsque la résonance du Fabry-Perot est balayée par une rampe. En dessous des signaux directs, les signaux dérivés sont également montrés. Ce sont ces derniers qui fournissent le signal d'erreur pour asservir la fréquence du laser couplé. On remarque aussi qu'en plus des raies de transition, des raies de croisement sont aussi enregistrées. Ces croisements sont dus à des classes d'atomes à vitesse non nulle, qui permet aux faisceaux de

pompe et de sonde d'être en résonances simultanées avec deux transitions voisines. Par exemple la condition pour le croisement 1-4 est donnée par

$$\begin{cases} \nu - \frac{v}{c}\nu = \nu_{F=4 \rightarrow F'=4} \\ \nu + \frac{v}{c}\nu = \nu_{F=4 \rightarrow F'=5} \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} \nu = \frac{\nu_{F=4 \rightarrow F'=5} + \nu_{F=4 \rightarrow F'=4}}{2} \\ \nu = \left(\frac{\nu_{F=4 \rightarrow F'=5} - \nu_{F=4 \rightarrow F'=4}}{\nu_{F=4 \rightarrow F'=5} + \nu_{F=4 \rightarrow F'=4}} \right) c \end{cases}$$

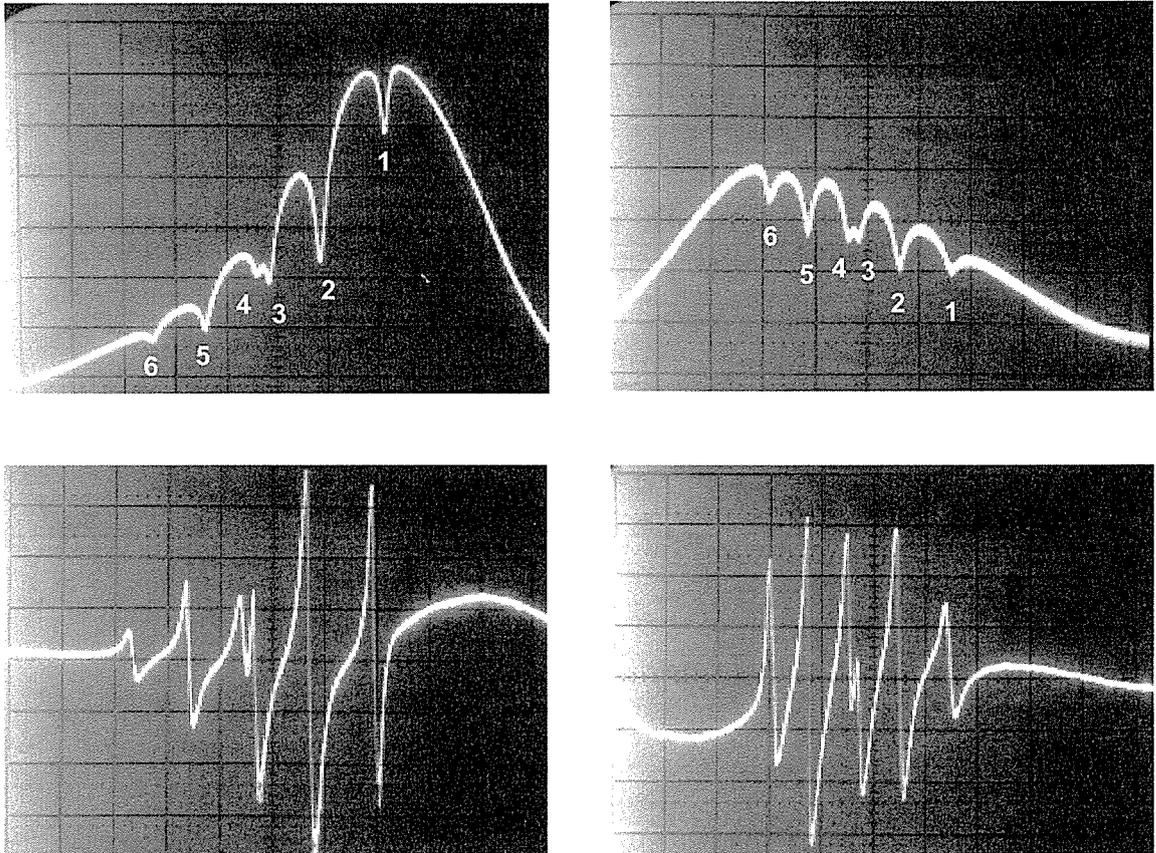


Fig. II-1-4. Spectre de haute résolution de la raie D₂ du césium. Les deux photos de gauche correspondent aux transitions à partir du niveau F = 4, et celles de droite aux transitions à partir du niveau F = 3. Les signaux dérivés correspondants sont montrés en dessous des signaux directs.

Les désignations de raies sont les suivantes :

à gauche, 1 : $F = 4 \rightarrow F' = 5$; 2 : croisement 1-4 ; 3 : croisement 1-6 ; 4 : $F = 4 \rightarrow F' = 4$;
5 : croisement 4-6 ; 6 : $F = 4 \rightarrow F' = 3$.

à gauche, 1 : $F = 3 \rightarrow F' = 4$; 2 : croisement 1-4 ; 3 : croisement 1-6 ; 4 : $F = 3 \rightarrow F' = 3$;
5 : croisement 4-6 ; 6 : $F = 3 \rightarrow F' = 2$.

II.1.3 Lasers à cavité étendue avec des diodes commerciales

Une autre méthode pour réduire la largeur spectrale consiste à augmenter la longueur de cavité L . Pour éviter la perte introduite dans un milieu actif, cet allongement est effectué par adjonction d'une section de cavité passive démunie de perte interne. Dans cette configuration, une des facettes de la diode est normalement traitée antireflet. La cavité est fermée au bout de la section ajoutée par un élément réfléchissant (miroir ou réseau). C'est la diode laser à cavité étendue^{12, 13, 14}. Dans cette configuration le facteur de réduction de largeur spectrale est proche du carré du rapport entre la longueur de la cavité étendue et celle de la diode. Comme la première est de l'ordre du centimètre et la dernière de l'ordre d'une fraction de mm, ce facteur peut être de plusieurs milliers.

Néanmoins le besoin d'un traitement antireflet pour une réflexion extrêmement faible sur une facette de la diode a contraint cette méthode à une utilisation limitée avec des diodes de fabrication spéciale. Nous avons ici généralisé cette méthode à une diode laser de production de série.

II.1.3.a Montage

La figure II-1-5 montre notre système de laser à cavité étendue.

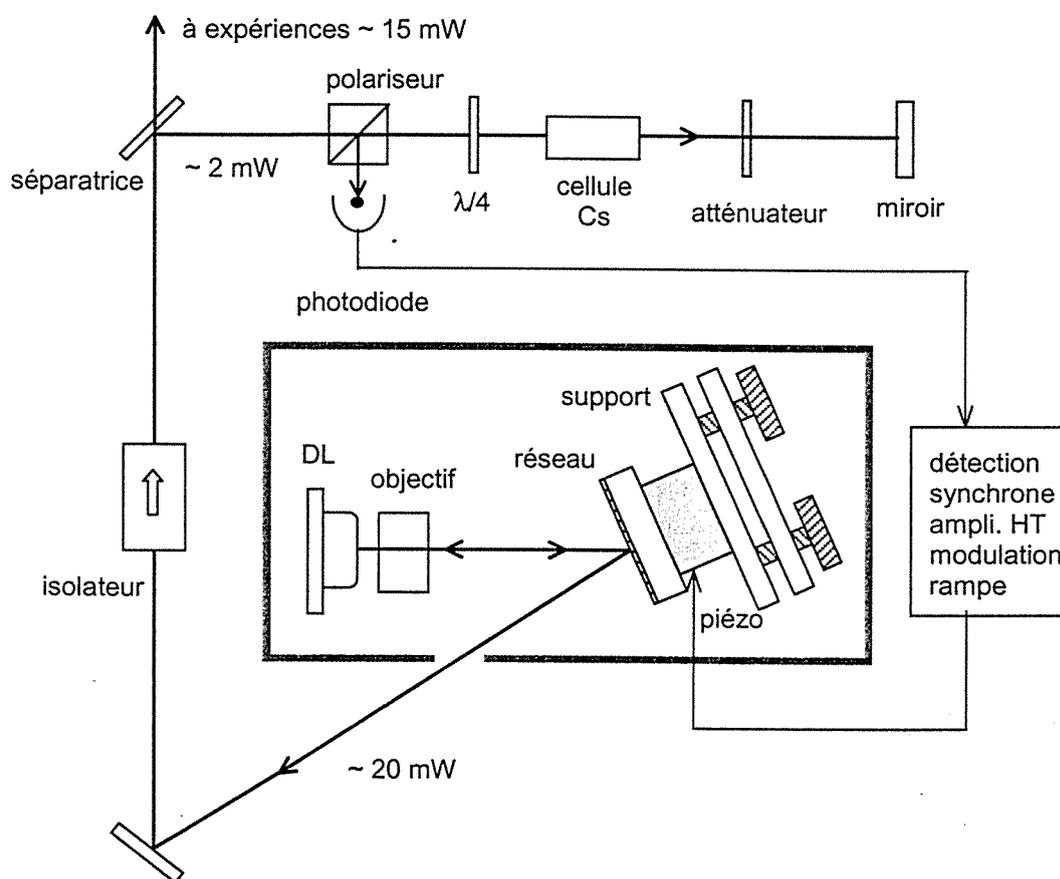


Fig. II-1-5. Laser à cavité étendue avec une diode commerciale.

Dans notre montage, une diode SDL 5412-H1 (ou DSL 5422-H1) est utilisée. Cette diode a une puissance de sortie maximale de 100 mW pour un courant de 150 mA (ou 150 mW pour 200 mA). Sa cavité a une longueur de 600 μm , ses deux facettes sont traitées pour avoir une

réflexion de 5% sur la facette avant et 90% arrière. Un objectif de focal 8 mm et d'ouverture numérique 0,5 est utilisé pour collimater le faisceau. Un réseau holographique de 1200 traits/mm est monté en configuration de Littrow à une distance de 8 cm de la diode. Blasé à 750 nm, ce réseau a une efficacité de 40% pour une polarisation parallèle aux traits à 852 nm. Le réseau est collé sur une cale piézo-électrique qui est lui-même fixé à un support de miroir de grande finesse de réglage. L'ensemble est monté sur une plaque en Invar, qui est à son tour supportée par une semelle en cuivre. Des résistances chauffantes sont plantées dans la pièce en cuivre, ce qui permet de maintenir l'ensemble à une température de 25°C. La cavité est enfermée dans un boîtier qui isole toutes perturbations mécaniques, acoustique et thermique. Le faisceau de sortie traverse le mur du boîtier par un hublot.

Une ligne d'absorption saturée est utilisée pour asservir à long terme la fréquence du laser. Le signal d'erreur par rapport à une raie atomique est appliqué sur le piézo dont le déplacement décale la fréquence du laser. Une rampe peut être aussi appliquée au piézo pour balayer la fréquence du laser.

Lorsque l'ordre 1 de la diffraction est bien réinjecté dans la diode le seuil de la diode diminue de 25 mA à 20 mA. On cherche à minimiser ce seuil pour optimiser le couplage avec le réseau. Typiquement avec une température diode de 25°C, la diode fonctionne avec 50% du courant maximal. Cette précaution est nécessaire pour éviter une puissance intra-cavité trop forte, étant donné que le couplage avec le réseau augmente le facteur de qualité de la cavité composée. Pour accorder sur la raie D₂, on tourne légèrement le réseau dans le plan horizontal jusqu'à l'apparition de fluorescence dans la cellule.

Quatre lasers à cavité étendue ont été montés au laboratoire.

II.1.3.b Résultats

Pour mesurer la largeur spectrale de nos lasers à cavité étendue, nous utilisons la méthode hétérodyne qui consiste à analyser le battement entre deux systèmes laser identiques. Les faisceaux issus des deux lasers sont superposés et envoyés après atténuation sur une photodiode rapide connectée à un oscilloscope numérique. Le signal de battement a été enregistré soit en temps réel soit accumulé et moyenné. Un calcul FFT permet d'obtenir le spectre du laser.

La figure II-1-6 montre un spectre obtenu avec un signal de battement enregistré en temps réel (1µs/div. à l'oscillo.). Les fréquences des deux lasers ont été calées très proches l'une de l'autre. Le spectre centré à 4 MHz a une largeur de 200 kHz, ce qui indique une largeur spectrale de l'ordre de 100 kHz pour chaque laser.

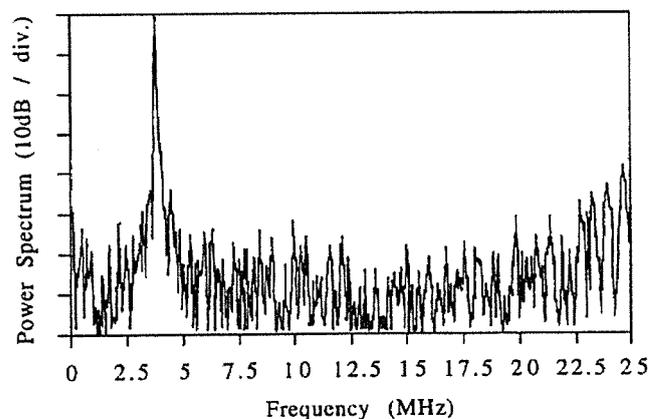


Fig. II-1-6. Spectre calculé à partir d'un signal de battement enregistré en temps réel.

Le spectre montré sur la figure II-1-7 est calculé à partir d'un signal de battement moyenné pendant une seconde. Dans ce cas-là les deux lasers ont été asservis sur les raies d'absorption du césium, l'un sur la transition $F = 4 \rightarrow F' = 5$ et l'autre sur la transition $F = 4 \rightarrow F' = 4$. Le spectre a une largeur de 2 MHz, ce qui indique une large apparente de l'ordre 1 MHz pour chaque laser. Cette largeur apparente correspond en fait à des jitters de la raie laser. La stabilité sur l'intervalle d'une seconde de nos lasers est donc de 1 MHz.

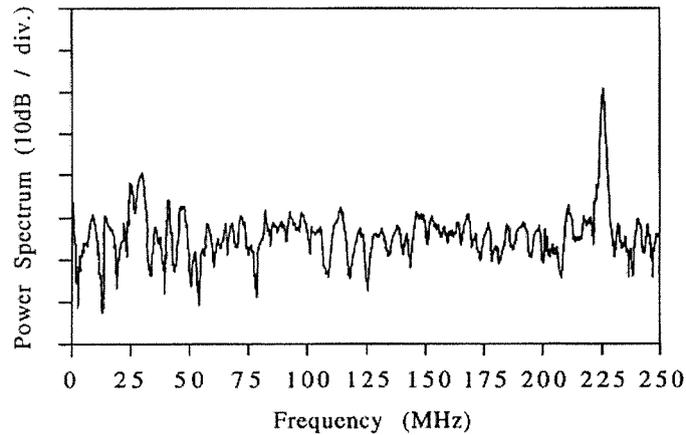


Fig. II-1-7. Spectre calculé à partir d'un signal de battement moyenné sur une seconde.

La plage d'accordabilité de nos lasers a été mesurée en balayant la fréquence laser autour de la raie $F = 4 \rightarrow F'$ par une rampe de tension appliquée au piézo. La figure II-1-8 montre le profil du signal détecté par la photodiode. On voit que le balayage de la fréquence laser est interrompu par des sauts. A l'aide de la structure hyperfine de la multiplicité $6p \ ^2P_{3/2}$ on peut déterminer la plage d'accordabilité continue à 1,8 GHz. Cette plage correspond à l'intervalle spectral libre du Fabry-Perot d'une longueur de 8 cm formé entre la facette de sortie de la diode et le réseau.

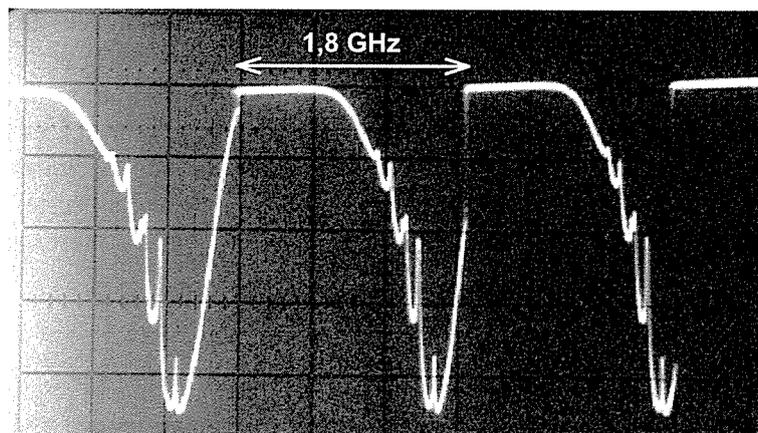


Fig. II-1-8. Les sauts dans un balayage de fréquence.

Pour éviter le saut de mode et accroître la plage d'accordabilité, il est nécessaire d'appliquer une rotation adéquate au réseau en même temps que le déplacement.¹⁴ La réflexion sur la facette avant de la diode est aussi un facteur qui réduit la plage d'accordabilité. Mais pour un grand nombre d'expériences, une accordabilité continue d'un GHz est suffisante. Alors notre montage a l'avantage d'être simple.

II.1.4 Diodes laser en batterie mises en phase par injection

Injection est un moyen de transmettre la qualité spectrale d'un laser stabilisé de faible puissance (maître) à un laser de puissance plus importante mais de mauvaise qualité spectrale (esclave). En régime continu, on parle du blocage de mode par injection (injection locking). En régime pulsé, on parle plutôt de l'initiation par injection (injection seeding). Dans ce paragraphe, un exemple du blocage de mode est présenté. Un exemple de l'initiation sera présenté plus loin avec un laser Ti:Saphir.

II.1.4.a Eléments théoriques

Injection d'un faisceau monomode dans la cavité d'un laser initialement multimodes a pour l'effet d'éteindre tous les modes libres au profit du mode injecté qui prend tout le gain disponible dans la cavité et devient amplifié. Ce phénomène est premièrement démontré en 1966¹⁵ et a été aussi étudié pour les diodes laser^{16, 17}. L'équation de van der Pol est utilisée pour décrire le mécanisme d'injection¹⁶. Le champ injecté est considéré comme une force extérieure dans l'équation de pilote déterminant l'évolution du champ laser dans la cavité esclave. La solution stationnaire de l'équation de von der Pol donne notamment la plage de blocage Δf en fonction du rapport entre la puissance injectée, P_{in} , et la puissance bloquée P_l :

$$\Delta f = \left(\frac{1}{2\pi\tau_p} \right) \sqrt{\frac{P_{in}}{P_l}}, \text{ ou } \tau_p \text{ est la durée de vie des photons dans la cavité esclave. Cette}$$

équation montre qu'une cavité esclave à faible facteur de surtension, Q , est plus sensible à injection, car la durée de vie des photons y est plus courte. Dans les diodes laser ou la durée de vie des photons est courte de l'ordre de 10^{-12} s, pour une plage de blocage de 1 GHz, on s'attend à un rapport P_l/P_{in} de 25,000, ce qui veut dire qu'une puissance de 100 mW peut être bloquée par une injection de 4 μ W.

Il est donc envisageable de mettre en phase un grand nombre de diodes laser par les injections en provenance d'une seule diode laser maître. Cette dernière peut être stabilisée par de diverses techniques discutées précédemment. On obtient ainsi une batterie de diodes laser ultra-stables dont les phases sont bloquées sur celle de la diode maître. Les fréquences de ces diodes peuvent être décalées mutuellement par intercalation de modulateurs acousto-optiques ou électro-optiques. Application d'une telle batterie de lasers en phase pourrait être par exemple la diffusion de Raman stimulée avec une paire de laser cohérents mais décalés en fréquence.

II.1.4.b Montage

La figure II-1-9 montre notre montage expérimental. La diode maître (ML) est une diode HITACHI HPL-1400. Sa largeur spectrale est compressée à 100 kHz par couplage à une cavité Fabry-Perot. Un isolateur optique de 45 dB d'atténuation construit au laboratoire est placé devant ce laser pour couper du retour parasite. Le faisceau traverse en suite un modulateur acousto-optique (AOM). L'ordre 1 à la sortie du modulateur est envoyé vers les diodes esclaves. L'utilisation de l'acousto-optique permet d'une part de choisir le décalage de

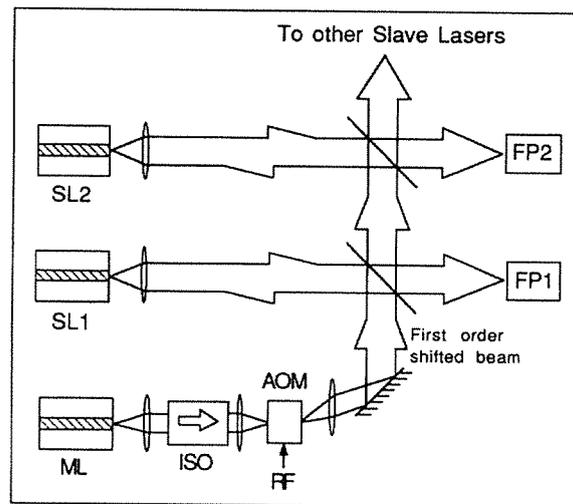


Fig. II-1-9. Montage expérimental des deux diodes laser bloquées en phase par injection.

fréquence des esclaves par rapport au maître et d'autre part d'éviter de la rétro-injection des esclaves vers le maître. En effet un seul isolateur n'était pas suffisant puisque l'amplification par injection peut être supérieure à 40 dB. On utilise deux diodes esclaves (SL1 et SL2) pour illustrer le principe d'une batterie de diodes bloquées en phase. Les diodes esclaves sont des diodes STC LT50A-03U, elles ont une structure en multi-puits quantiques guidée par indice et fournit 50 mW maximale. Devant les diodes esclaves, une séparatrice prélève environ 5% de puissance du faisceau injecteur. Typiquement un faisceau parallèle de 20 μW est focalisé sur chaque diode par l'objectif de celle-ci. Un meilleur couplage est obtenu lorsque le faisceau injecteur a une section comparable à celle du faisceau de la diode esclave. Le spectre des diodes esclaves est analysé par un Fabry-Perot (FP1 et FP2).

II.1.4.c Résultats

Pour aligner le faisceau injecteur sur une diode esclave, on fixe la fréquence du maître et balaye celle de l'esclave en modulant son courant. La transmission du Fabry-Perot est observée sur un oscilloscope. Quand l'injection commence à être bien aligner et la différence de fréquence entre l'esclave et le maître devient inférieure à la plage de blocage, la courbe de transmission du Fabry-Perot change d'aspect. Un plateau apparaît correspondant à la plage de blocage. On cherche alors à élargir ce plateau en optimisant l'alignement et on ajuste le courant de la diode esclave pour centrer le plateau. La figure II-1-10 montre les courbes de transmission des Fabry-Perot pour les deux diodes esclaves sans injection, injectées par une diode maître en fonctionnement libre, et injectées par une diode maître stabilisée.

La plage de blocage est mesurée avec la largeur du plateau en fonction de la puissance injectée. On montre sur la figure II-1-11 le résultat en fonction du rapport P_{in}/P_1 . En accord avec la théorie, une variation en racine carré de ce rapport est trouvée. Un ajustement donne une durée de vie des photons de τ_p de $1,1 \times 10^{-12}$ s.

La cohérence entre l'esclave et le maître est observée avec le battement entre l'esclave et l'ordre zéro du maître. On enregistre un battement à la fréquence du pilotage de l'acousto-optique qui est de 100 MHz dans les expériences. La figure II-1-12 montre le signal de battement comparé à un signal de battement lorsqu'on coupe l'injection. Dans ce dernier cas, on mesure en fait la cohérence temporelle de l'esclave libre, puisque celle du maître est largement supérieure. Une valeur de 45 ns est mesurée correspondant à une largeur spectrale de l'ordre de 20 MHz. Avec injection le temps de cohérence augmente considérablement.

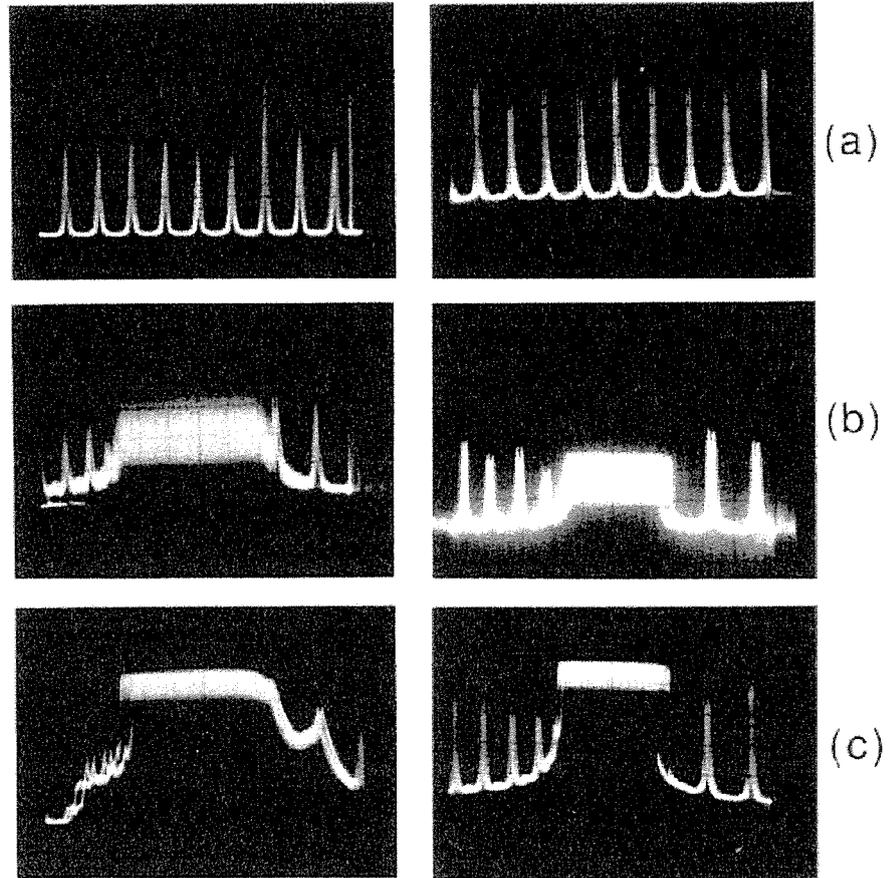


Fig. II-1-10. Transmission Fabry-Perot des diodes esclave : a) sans injection ; b) injectées par un maître en fonctionnement libre ; c) injectées par un maître stabilisé.

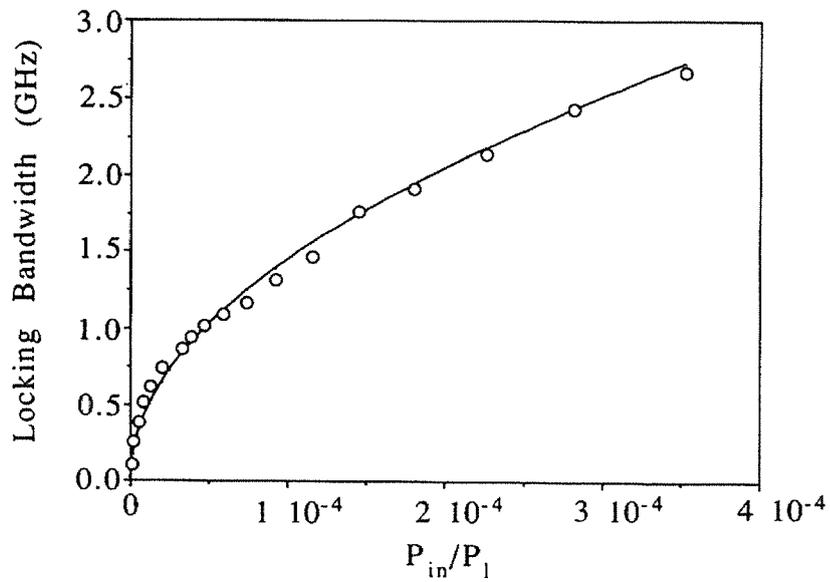


Fig. II-1-11. Plage de blocage en fonction du rapport P_{in}/P_l .

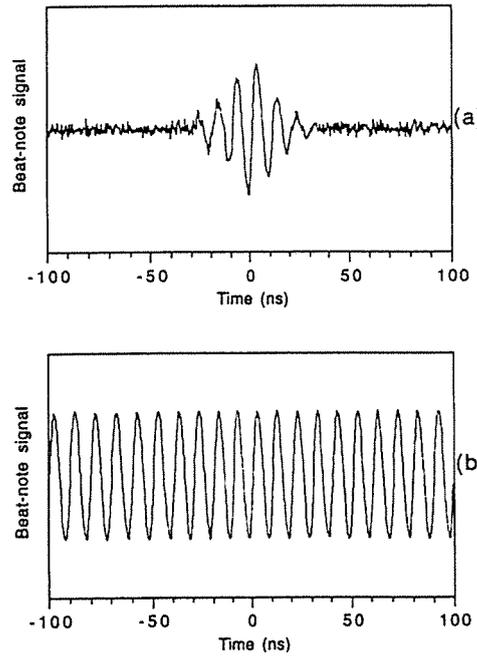


Fig. II-1-12. Signaux de battement entre l'esclave et le maître enregistrés par un oscilloscope numérique avec un temps de moyennage de 205 ms : a) sans injection ; b) avec injection.

La cohérence entre les esclaves est aussi mesurée. Dans ce cas-là, on utilise deux acousto-optiques pour décaler les fréquences des deux esclaves. La figure II-1-13 montre un signal de battement lorsque les deux esclaves sont injectées avec un décalage de fréquence de 50 kHz. La faible fréquence de battement nous permet d'observer le signal sur un intervalle de 1 ms, sur laquelle les franges de battement sont observées avec une bonne visibilité. On en déduit donc que le temps de cohérence entre les esclaves dépasse 1 ms.

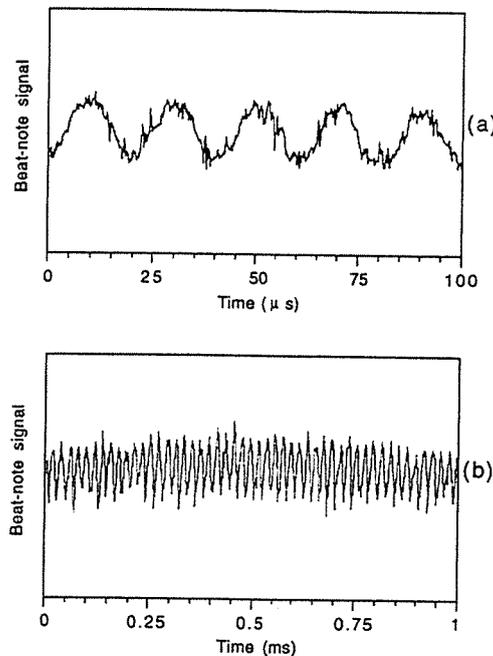


Fig. II-1-13. Signaux de battement entre les esclaves enregistrés en temps réel avec un oscilloscope numérique : a) sur une intervalle de 100 μ s ; b) sur une intervalle de 1 ms .

II.1.5 Conclusion

Pendant la période entre 99 et 94, nous avons développé au Laboratoire Aimé Cotton des systèmes de diodes laser stabilisées pour nos expériences de refroidissement d'atomes de césium par laser. Cette période correspond à un développement rapide de ces lasers de haute performance, stimulé notamment par les besoins suscités dans les expériences d'atomes froids. Des diodes laser stabilisées sont actuellement disponibles commercialement. Mais j'estime que j'ai eu beaucoup de chance de les avoir montées à une époque où elles étaient maîtrisées seulement dans quelques laboratoires de recherche. J'ai énormément appris. C'est une expérience qui m'est chère aussi parce qu'elle témoigne un échange constructif entre la recherche fondamentale et le développement industrielle. J'en profiterai.

Références :

1. J.C. Camparo, « The diode laser in atomic physics », *Contemp. Phys.* **26**, 443 (1985).
2. Carl E. Wieman, Leo Hollberg, « Using diode lasers for atomic physics », *Rev. Sci. Instrum.* **62**, 1 (1991).
3. J.L. Picqué, I.E.E.E. *Jl. Quant. Electron.*, **QE-10**, 892 (1974).
4. J.L. Picqué, I.E.E.E. *Metrologia*, **13**, 115 (1977).
5. M. Arditi and J.L. Picqué, *J. Phys. B* **8**, L331 (1975).
6. M. Arditi and J.L. Picqué, *Optics Commun.* **15**, 317 (1975).
7. M. Arditi and J.L. Picqué, *J. Phys. Lett.* **41**, L379 (1980).
8. Charles H. Henry, « Theory of linewidth of semiconductor lasers », *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-18**, 259 (1982); C.H. Henry, « Phase noise in semiconductor lasers », *Journ. of Lightw. Techn.*, **LT-4**, 28 (1986).
9. Philippe Laurent, « Stabilisation en fréquence de diodes laser par couplage optique résonant sur une cavité Fabry-Perot confocale », Thèse de Doctorat, Université de Paris-Sud, Centre d'Orsay, (1989).
10. B. Dahmani, L. Hollberg and R. Drullinger, « Frequency stabilisation of semiconductor lasers by resonant optical feedback », *Opt. Lett.* **12**, 876 (1987).
11. Ph. Laurent, A. Clairon, and Ch. Bréant, « Frequency noise analysis of optically self-mocked diode lasers », *IEEE J. Quantum Electron.* **25**, 1131 (1989).
12. M.W. Fleming and A. Mooradian, « Spectral characteristics of external-cavity controlled semiconductor lasers », *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-17**, 44 (1981).
13. Michel de Labachellerie, « Principales caractéristiques des lasers à semiconducteur à cavité étendue. Application à l'amélioration des propriétés spectrales des diodes laser », Thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay, (1988).
14. M. de Labachellerie and P. Cerez, « An 850 nm semiconductor laser tunable over a 300 Å range », *Optics Commun.* **55**, 174 (1985); M. de Labachellerie, C. Latrasse, P. Kemssu and P. Cerez, « The frequency control of laser diodes », *J. Phys. III* **2**, 1557 (1992).
15. H.L. Stover and W.H. Steier, « Locking of laser oscillator by light injection », *Appl. Phys. Lett.* **8**, 91 (1966).
16. Soichi Kobayashi, Tztsuya Kimura, « Injection locking in AlGaAs semiconductor laser », *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-17**, 681 (1981).
17. Isabelle Petitbon, Philippe Gallion, Guy Debarge, and Claude Chabran, « Locking bandwidth and relaxation oscillation of an injection-locked semiconductor laser », *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-24**, 148 (1988).

Nos publications sur ce travail :

1. J. Yu, M.-C. Gagné, C. Valentin, R.-L. Yuan and P. Pillet, « Narrowband frequency control of an injection-locked diode-laser battery », *J. Phys. III* **2**, 1615 (1992).

Chapitre II.2

Lasers à Etat Solide

II.2.1 Lasers solides et leur application dans la télédétection de pollutions atmosphériques

II.2.1.a Lasers solides vibroniques à bande d'émission large

De puis l'invention du laser en 1960 par T. H. Maiman avec la démonstration d'un laser à rubis.¹ les lasers solides ont long temps laissé la place de la vedette aux lasers à colorant, qui malgré de nombreux désavantages, présentent une large accordabilité indispensable à un grand nombre d'applications scientifiques.

L'avènement du cristal saphir dopé au titane ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ti}^{3+}$) a provoqué le retournement de situation. La première opération laser du Ti:Saphir a été rapportée par P.F. Moulton en 1982 à la 12^e conférence IQEC.² Les physiciens découvrent alors un cristal laser à propriété spectroscopique exceptionnelle avec une bande d'émission de 650 à 1150 nm, élargie par le couplage vibronique entre l'ion dopant et la matrice cristalline, complétée d'une qualité thermo-mécanique idéale. D'autres cristaux laser vibroniques ont été développés plus tard avec certaines propriétés intéressantes, par exemple le Cr:LiSAF découvert par S.A. Payne et al. à Livremore à 1989³. Absorbant dans le rouge, ce cristal peut être pompé directement par diodes laser.

La grande largeur d'émission confère à ces cristaux laser la potentialité d'être utilisés dans des lasers monomode accordables mais aussi dans des lasers à blocage de modes émettant des impulsions ultra-brèves. Les performances réalisées dépassent celles des lasers à colorant avec en plus tous les avantages pratiques que peut avoir un laser à état solide. Les gammes de longueur d'onde couvertes augmentent sans cesse avec la conversion nonlinéaire de fréquence. Aujourd'hui les lasers solides remplacent progressivement les lasers à colorant dans un grand nombre d'applications.

II.2.1.b Principales propriétés du cristal Ti:Saphir

Le cristal Ti:Saphir est composé d'une matrice de saphir (Al_2O_3) dans lequel certains ions aluminium Al^{3+} ont été remplacés par des ions titane Ti^{3+} . La géométrie de ce cristal lui confère une grande dureté, 9/10 par rapport à celle du diamant. Ce cristal est en plus non hygroscopique et de très bon conducteur thermique, 34 W/(m°C) soit 1/10 du cuivre à la température ambiante.⁴ Le cristal a un indice de réfraction de $n_0 = 1,76$ et un indice nonlinéaire de $n_2 = 3,2 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$.⁴

L'ion Ti^{3+} possède 19 électrons répartis selon la configuration suivante : $(1s)^2(2s)^2(2p)^6(3s)^2(3d)^2$. Dans la matrice du saphir, la dégénérescence du niveau fondamental de l'électron 3d d'un ion libre est levée par l'interaction avec le champ cristallin. Les niveaux d'énergie sont disposés comme illustrés sur la figure II-2-1. Remarquons ici le seul niveau excité dans Ti^{3+} , qui évite le phénomène d'absorption de niveau excité (ESA). Comme les transitions sont de nature vibronique il convient de présenter les niveaux électroniques en fonction du déplacement d'un ion par rapport à sa position d'équilibre dans la matrice (Fig. II-2-2). De cette représentation, on distingue un système laser à quatre niveaux : absorption dans la bande bleue ou verte ; relaxation vers le fond des niveaux vibrationnels dans l'état excité ; émission dans la bande rouge-IR ; relaxation vers le fond des niveaux vibrationnels dans l'état fondamental.

Les sections efficaces d'absorption et d'émissions ont été mesurées par Moulton² et sont données sur la figure II-2-3. Comme le saphir est un cristal biréfringent uniaxial, sa propriété spectroscopique diffère selon la polarisation. On note π pour la polarisation parallèle à l'axe c et σ pour la polarisation perpendiculaire. La valeur maximale de la section efficace du gain est estimée par Moulton.²

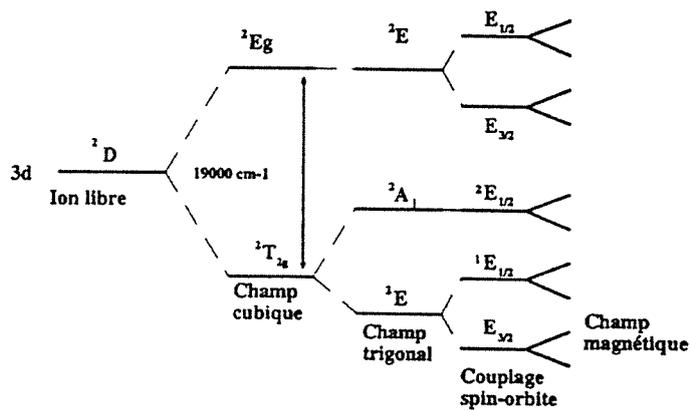


Fig. II-2-1. Diagramme d'énergie du Ti^{3+} dans la matrice Saphir d'après la référence 4.

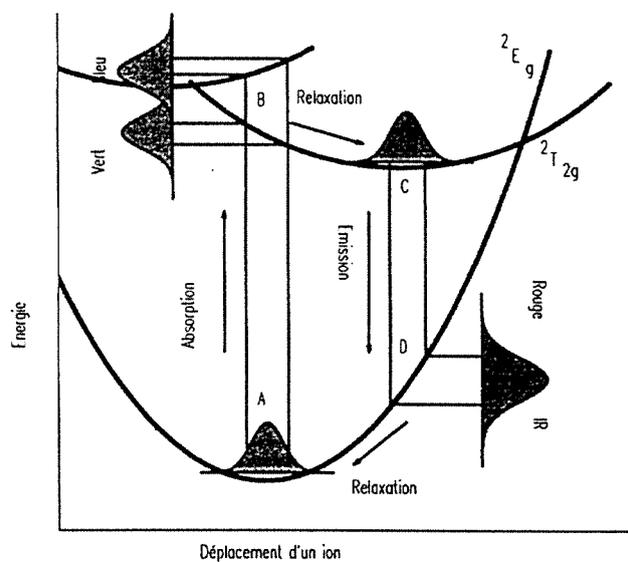


Fig. II-2-2. Niveaux d'énergie en fonction du déplacement d'un ion Ti^{3+} dans la matrice Saphir d'après la référence 4.

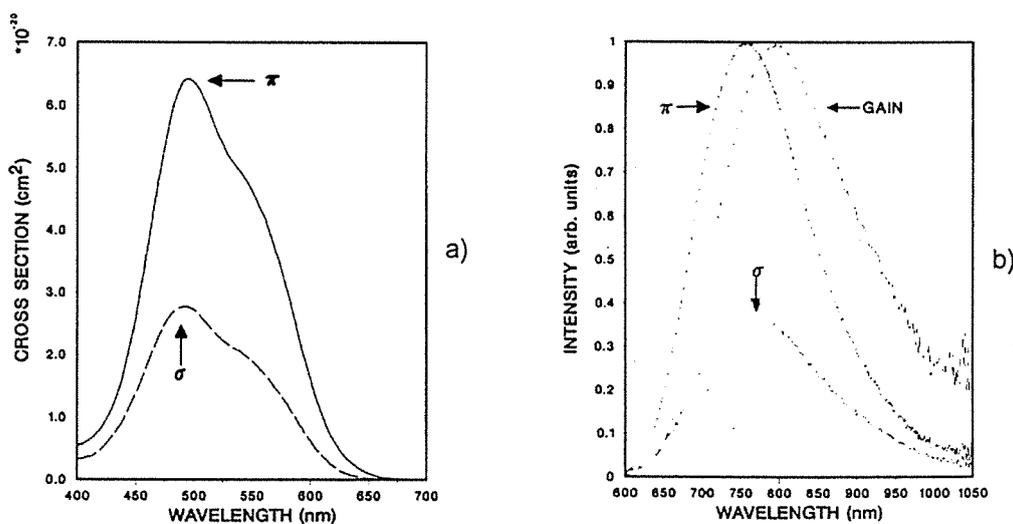


Fig. II-2-3. a) Spectre d'absorption, et b) Spectre de fluorescence avec le profil du gain calculé du Ti:Saphir d'après la référence 2.

Estimations basées sur de différentes méthodes conduisent à des valeurs à 795 nm comprises entre $2,7 \times 10^{-9} \text{ cm}^2$ et $4,8 \times 10^{-9} \text{ cm}^2$. La mesure sur la durée de vie conduit à une valeur de $5,15 \mu\text{s}$ à la température ambiante (Fig. II-2-4). Remarquons ici que cette durée de vie est relativement courte. C'est en effet un handicap du Ti:Saphir, qui lui défavorise dans des amplificateurs de puissance.

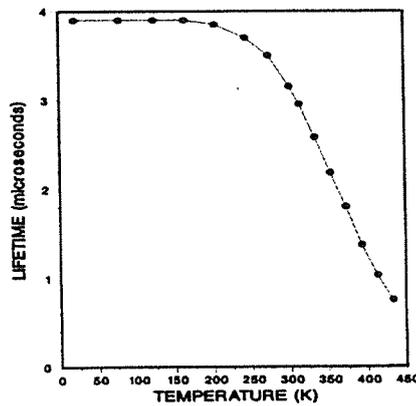


Fig. II-2-4. Durée de vie de fluorescence pour la transition ${}^2E \rightarrow {}^2T_2$ du Ti:Saphir d'après la référence 2.

La technologie actuelle est capable synthétiser des cristaux Ti:Saphir de grandes dimensions avec un facteur de mérite (FOM : $\alpha_{510}/\alpha_{800}$) supérieur à 200.⁵

II.2.1.c Principales propriétés du cristal Cr:LiSAF

Le cristal de Cr:LiSAF est l'un des cristaux de la famille des fluorures. Dans la matrice du cristal de LiSAF certains ions Al^{3+} sont remplacés par des ions Cr^{3+} . Doté d'une qualité optique exceptionnelle, cependant ce cristal a une mauvaise conductivité thermique, $3,1 \text{ W}/(\text{m}^\circ\text{C})$ ⁶ soit 10 fois moins que le Ti:Saphir. Sa dureté est beaucoup moins importante que celle de Ti:Saphir, soit 4/10 par rapport au diamant. Le cristal a un indice de réfraction de $n_0 = 1,4$ et un indice non linéaire 4 fois plus petite que celle du T:Saphir⁷ soit $n_2 = 0,8 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$.

L'ion Cr^{3+} possède 21 électrons qui se répartissent dans une configuration suivante : $(1s)^2(2s)^2(2p)^6(3s)^2(3p)^6(3d)^3$. Les niveaux d'énergie de l'ion Cr^{3+} dans la matrice de LiSAF sont présentés sur la figure II-2-5^{8,9}.

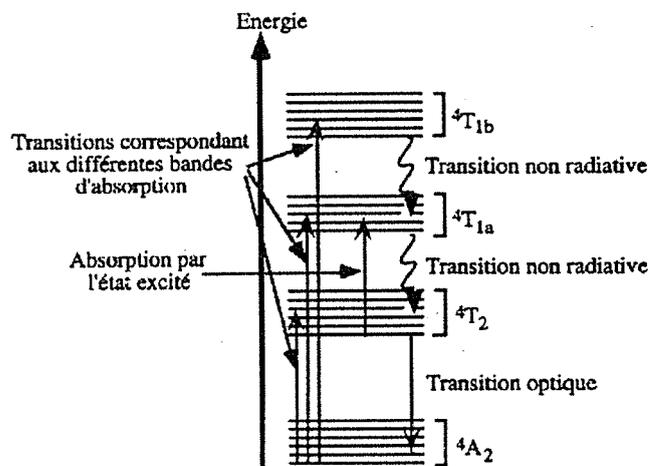


Fig. II-2-5. Niveau d'énergie de l'ion Cr^{3+} dans la matrice de LiSAF d'après les références 7 et 8.

On remarque l'existence de plusieurs niveaux excités, ce qui peut conduire à l'absorption par l'état excité (ESA). En fonction du déplacement d'un ion, on peut présenter les niveaux de transition vibronique sur la figure II-2-6. On retrouve ici un système à quatre niveaux.

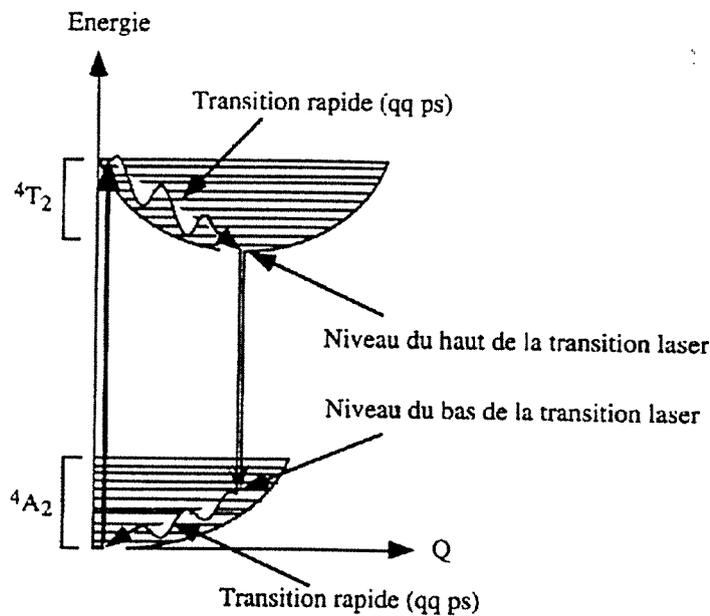


Fig. II-2-6. Niveau d'énergie de l'ion Cr^{3+} dans la matrice de LiSAF en fonction du déplacement de l'ion d'après les références 7 et 8 .

Les sections efficaces d'absorption et d'émission ont été mesurées par Payne et al.³. On reproduit ici les résultats sur les figures II-2-7 et II-2-8 pour les deux polarisations π et σ .

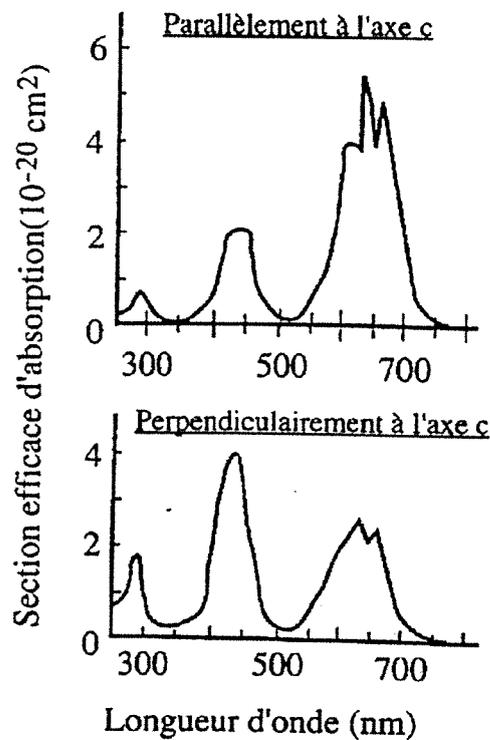


Fig. II-2-7. Spectre d'absorption du Cr^{3+} :LiSAF d'après la référence 3.

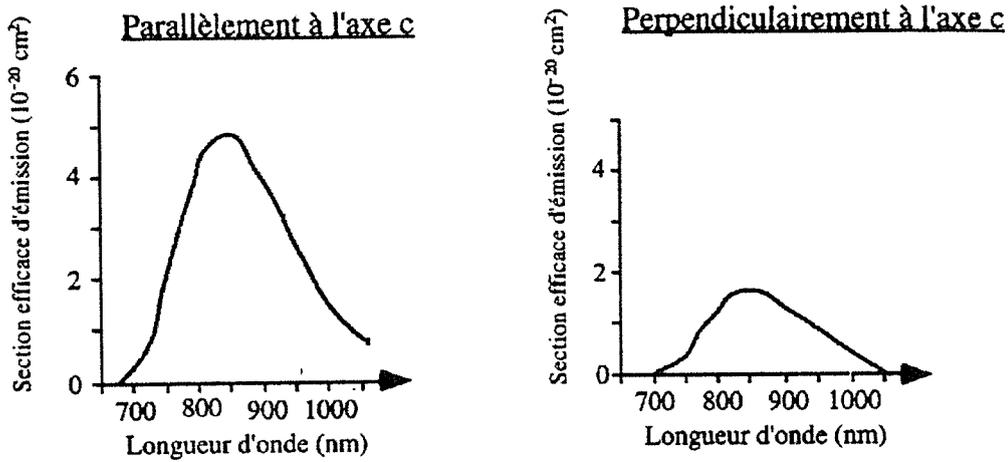


Fig. II-2-8. Spectre de fluorescence du Cr^{3+} :LiSAF d'après la référence 3.

On voit que le Cr:LiSAF possède une émission aussi large que le Ti:Saphir et qu'en plus sa bande d'absorption dans le rouge lui permet d'être pompé directement par diodes laser (AlGaInP). C'est donc un cristal très prometteur pour des lasers solides pompés diode. On mentionne aussi une longue durée de vie d'état excité de $67 \mu\text{s}$ ^{8,9} à température ambiante qui permet dans un amplificateur de stocker plus d'énergie.

Malheureusement quelques phénomènes physiques peuvent limiter les performances du Cr:LiSAF. Citons l'absorption par l'état excité discutée précédemment, l'absorption par l'état fondamental due à un recouvrement entre les courbes d'absorption et d'émission. Mais le plus gênant est le phénomène de « thermal quenching ».¹⁰ On constate que la durée de vie de fluorescence diminue quand la température dans le cristal augmente (Fig. II-2-9). Pour le Cr:LiSAF à une température de 70°C , la durée de vie de l'état excité est divisée par un facteur de 2 par rapport à la température ambiante. Ce phénomène est particulièrement pénalisant pour Cr:LiSAF à cause de sa mauvaise conductivité thermique, et limite la puissance de pompage optique.

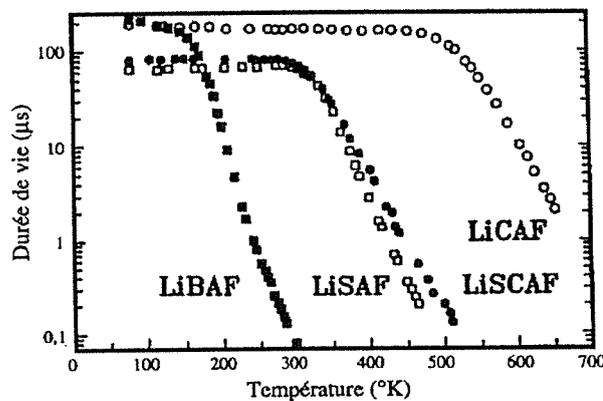


Fig. II-2-9. Durée de vie de l'état excité de l'ion Cr^{3+} d'après la référence 9.

II.2.1.d Application des lasers à Ti:Saphir et à Cr:LiSAF à la détection des polluants atmosphériques

L'utilisation de la spectroscopie optique, notamment dans la technique Lidar (Light Detection and Ranging) a permis ces dernières années un accès direct à la dynamique de la pollution atmosphérique. Ainsi, des cartographies tridimensionnelles de concentration de polluants tels

que NO, NO₂, SO₂ ou O₃ ont été obtenues à très haute sensibilité (partie par milliard, ppb) et en temps réel. Cet accès à la dynamique permet en particulier de caractériser la dispersion des panaches et leur impact, de fixer les responsabilités, d'étudier les formations de smog et de couches d'inversion ou simplement d'obtenir une image précise et réaliste de la qualité de l'air dans un site donné.

Pour les polluants gazeux, la méthode spectroscopique utilisée de l'absorption différentielle (DIAL, Differential Absorption Lidar)^{11,12} exige du laser, l'émetteur dans une station Lidar, un certain nombre de qualités : une énergie par impulsion suffisamment élevée pour atteindre une portée intéressante ; une bonne qualité spectrale et surtout une accordabilité pour détecter sélectivement des polluants ; et une compacité et fiabilité pour une opération sur le terrain.

Le Ti:Saphir a démontré ses capacités à remplir ces exigences. Pompé par flash-lampe, un laser Ti:Sphire produit des impulsions d'énergie de plusieurs centaines de mJ dans une durée d'une dizaine de ns^{13,14}. Avec le doublage ou le triplage, l'absorption d'un certain nombre de polluants peut être couverte (Tab. II-2-1)¹². L'utilisation d'un laser basé sur le Cr:LiSAF dans un système lidar peut être très intéressante à la mesure que le pompage diode réduit significativement l'encombrement.

Gaz	λ absorbée (nm)	λ fondamentale (nm)	λ de référence (nm)	λ fondamentale (nm)
NO ₂	398,3	796,6 (x 2)	397,0	794,0 (x 2)
SO ₂	286,9	859,8 (x 3)	286,3	858,9 (x 3)
O ₃	282,4	847,2 (x 3)	286,3	858,9 (x 3)
Toluène	266,9	800,7 (x 3)	266,1	798,3 (x 3)
Benzène	259,2	777,6 (x 3)	257,9	773,7 (x 3)

Tab. II-2-1. Principaux polluants détectables avec un lidar basé sur un laser Ti:Saphir pompé par flash-lampe. Sont indiquées pour une application DIAL : les longueurs d'onde absorbées (λ_{on}) ; les longueurs d'onde de référence (λ_{off}) ; et les longueurs d'onde fondamentale à partir desquelles les λ_{on} et les λ_{off} sont générés par un doublage (x2) ou un triplage (x3).

Mis à part des polluants en phase gazeuse, des poussières, des gouttelettes d'eau et autres aérosols jouent également un rôle important dans les processus de pollution de l'atmosphère. Citons par exemple les polluants adsorbés sur des poussières, qui ne sont pas détectables par DIAL, la problématique des brouillards et pluies acides (solvation des polluants dans les gouttelettes) ou les effets catalytiques sur la surface de particules, comme dans le cas de la destruction de l'ozone stratosphérique. Plusieurs tentatives de caractérisation d'aérosols ont été menées avec un Lidar, et ne sont jusqu'à présent que peu satisfaisantes. Les meilleurs résultats obtenus consistent à mesurer l'efficacité de rétrodiffusion à 3 ou 4 longueurs d'onde, et à ajuster les résultats à ceux que l'on calcule pour une distribution de taille définie *a priori*.

Une approche nouvelle consiste à induire des processus nonlinéaires dans ces aérosols ou gouttelettes d'eau par des lasers à impulsions ultra-brèves (femtosecondes). L'objectif est d'obtenir des informations complémentaires pour caractériser ces particules, à savoir leur distribution de taille, leur composition, leur phase (liquide ou cristalline) ou leur activité chimique. Les processus induits sont donc la diffusion Mie nonlinéaire, la génération d'harmoniques, la diffusion Raman, et la génération de lumière blanche.

Induire des processus nonlinéaires dans l'atmosphère nécessite l'emploi des impulsions ultra-brèves et ultra-puissantes, de durée d'une centaine de femtoseconde, et de puissance de quelques dizaines de GW jusqu'à plusieurs TW. Les oscillateurs femtoseconde et les chaînes d'amplification à Ti:Saphir sont les plus performants et les plus couramment utilisés pour produire ces impulsions. Les oscillateurs basés sur le Cr:LiSAF présente un alternatif

attrayant. Le pompage par diode rend l'oscillateur plus compact et consommant moins d'énergie.

Avec la motivation d'améliorer le lidar actuel et d'innover dans un lidar nonlinéaire, nous avons entrepris des travaux de développement sur des lasers basés sur le Ti:Saphir et le Cr:LiSAF. Ces travaux ont été réalisés dans l'équipe du Professeur Jean-Pierre Wolf au Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire (LASIM) à l'Université Claude Bernard-Lyon 1, depuis 1994 après à ma nomination à Lyon. Dans la suite de ce chapitre ces travaux sont présentés en plus de détails.

II.2.2 Initiation par injection d'un laser à Ti:Saphir pompé par flash-lampe

Initiation par injection (injection seeding) est une méthode qui vise à contrôler la fréquence d'un laser pulsé (esclave) de haute énergie par un autre laser (maître) de faible puissance mais de meilleure qualité spectrale, monomode en générale. C'est la version en régime pulsé du blocage de modes par injection. Dans cette méthode, l'insertion des éléments sélectifs en longueur d'onde dans la cavité du laser de puissance¹⁵ n'est plus nécessaire, ce qui élimine le problème d'endommagement des optiques et augmente l'efficacité du laser.

La technique est d'abord employée pour obtenir l'opération mono-fréquence d'un laser Nd:YAG déclenché. L'injecteur est en général un petit YAG monomode pompé par diode.¹⁶ ¹⁷ Lasers à alexandrite ont été aussi injectés soit par une diode laser¹⁸ soit par un laser Ti:Saphir continu monomode.¹⁹ L'injection des lasers à Ti:Saphir pompés par YAG doublé a été démontrée avec l'injection d'un laser Ti:Saphir monomode,^{20,21} d'une diode laser,^{20,21} ou d'un laser à semi-conducteur à cavité verticale (VC-SEL).²² Les applications de ces lasers injectés sont notamment la mesure de la concentration de la vapeur d'eau atmosphérique par la technique de DIAL.

Dans notre expérience, un laser Ti:Saphir pompé par flash-lampe fonctionnant en régime déclenché (Q-switching) est injecté par une diode AlGaAs continu monomode émettant à 800 nm. Une partie de l'énergie (70%) de sortie du Ti:Saphir est bloquée sur le mode injecté avec une largeur spectrale de 250 MHz. Pour l'application lidar, l'opération monomode du laser Ti:Saphir permet une meilleure sélectivité en longueur d'onde de résonance des polluants à détecter, et une meilleure efficacité pour les processus nonlinéaires de conversion de fréquence (SHG, THG, OPO). La possibilité de varier la longueur d'onde de la diode d'injection par un simple changement de son courant permet en plus une opération en double longueurs d'onde du Ti:Saphir. Cette opération est fondamentale dans un DIAL.

II.2.2.a Montage

Notre montage est illustré sur la figure II-2-10. Le laser Ti:Saphir utilisé est un laser commercial de la société ELIGHT pompé par flash-lampe à 20 Hz. Le barreau a un diamètre de 6mm et une longueur de 100 mm et est dopé à 0,15% en poids. La cavité linéaire a une longueur de 50 cm. En fonctionnement libre, des prismes de dispersion sont insérés dans la cavité pour obtenir une émission dans une largeur spectrale de 0,2 nm. Le faisceau d'injection est émis par une diode AlGaAs (SDL-5311-G1), qui fournit au maximum 100 mW à 800 nm. On utilise deux isolateurs (30 dB chacun) pour couper le retour du Ti:Saphir vers la diode. Un télescope est utilisé pour adapter le diamètre du faisceau d'injection au celui du Ti:Saphir.

Le faisceau d'injection est introduit dans la cavité esclave par une lame en quartz inséré dans la cavité à l'angle de Brewster. Le faisceau incident a une polarisation verticale, i.e. perpendiculaire au plan de la cavité. 13% de puissance injectée est prélevée et dirigée vers la Pockels. Quand la cavité est fermée, la Pockels est polarisée à $\lambda/4$. La polarisation du faisceau injecté est alors tournée de 90° après un aller-retour dans la Pockels. Le faisceau traverse la

lame en quartz et pénètre dans l'autre moitié de cavité. Si à son retour la cavité devient ouverte avec la tension de la Pockels mise à zéro, le faisceau injecté conserve la polarisation dans le plan horizontal et reste piégé dans la cavité. Le basculement de la Pockels coupe en même temps l'entrée de la cavité au faisceau d'injection. Dès que la puissance couplée dans la cavité dépasse $500 \mu\text{W}$ l'initiation par injection commence d'être observée. Typiquement on couple 10 mW dans la cavité Ti:Saphir pour une injection stable.

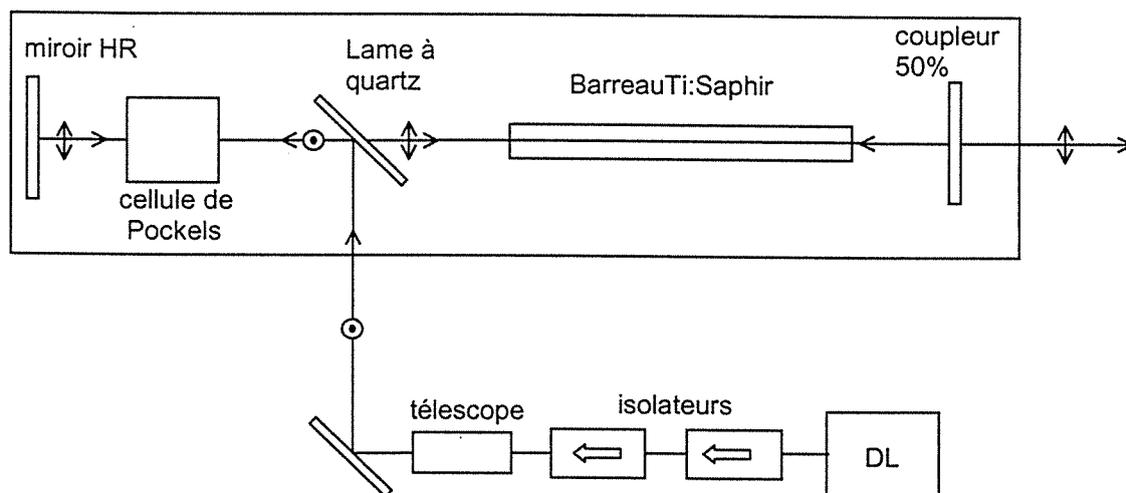


Fig. II-2-10. Injection d'un laser Ti:Saphir pompé par flash-lampe avec une diode laser monomode.

II.2.2.b Résultats

Lorsque l'injection est alignée, on observe une diminution de temps de création d'une impulsion Ti:Saphir. On optimise pour que cette diminution soit maximale (Fig. II-2-11).

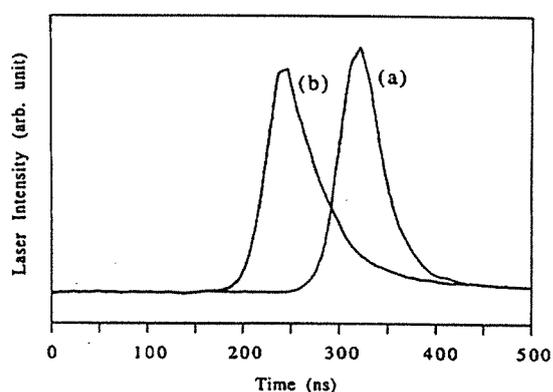


Fig. II-2-11. Diminution du temps de création d'un laser Ti:Saphir sous injection :
a) avec injection b) sans injection.

La modification du spectre est observée par un spectromètre couplé à une barrette CCD. Le résultat est montré sur la figure II-2-12 où on voit, sous injection, l'apparition d'un pic fin à la longueur d'onde d'injection et décalé par rapport au sommet du spectre du Ti:Saphir libre.

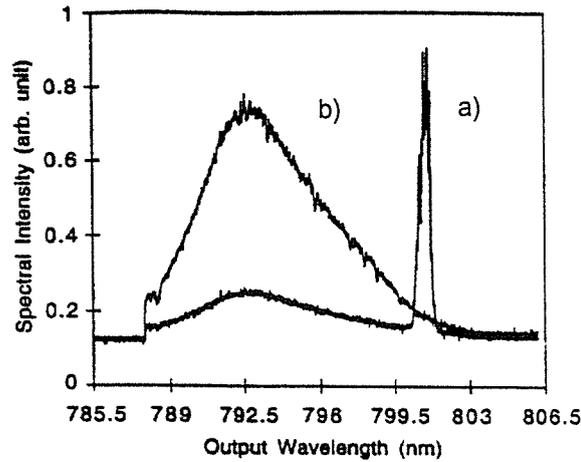


Fig. II-2-12. Modification du spectre du laser Ti:Saphir sous injection :
a) avec injection b) sans injection.

La largeur spectrale est analysée par un Fabry-Perot balayé par une rampe de haute tension très lente. Sur la figure II-2-13 on montre la courbe de transmission du Ti:Saphir injecté comparé à celle de la diode.

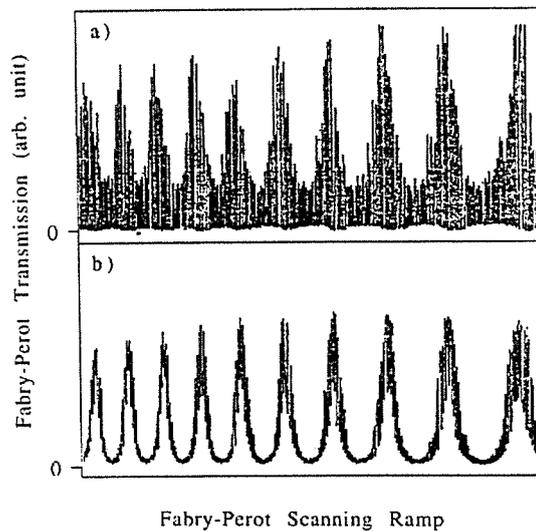


Fig. II-2-13. Transmission du Fabry-Perot du Ti:Saphir injecté (a) comparée à celle de la diode (b).

La largeur des pics est mesurée à 250 MHz, comparable à celle des pics du faisceau de la diode. On remarque que le niveau bas de la transmission du Ti:Saphir n'est pas à zéro, ceci correspond à une partie d'énergie non bloquée sur le mode injecté. Cette partie non bloquée est aussi visible sur le spectre de la figure II-2-12. On évalue la partie d'énergie bloquée à 70% de l'énergie totale. Cette efficacité d'injection dépend sensiblement de l'accord entre la fréquence injectée et la résonance de la cavité laser esclave. Pour un laser pompé par des flash-lampes, le barreau laser est chauffé pendant le pompage. Le changement de son indice par l'effet thermique décale la résonance de la cavité. Un accord de phase entre le maître et l'esclave est assez difficile. On peut utiliser un système d'asservissement dynamique qui maintient la résonance entre le faisceau injecté et la cavité esclave pendant l'injection. Cet asservissement devrait augmenter l'efficacité d'injection.

On démontre l'opération à deux longueurs d'onde par alterner le courant de la diode entre deux valeurs. Cette opération simule le DIAL où une double cavité permet d'émettre deux

longueurs d'onde alternativement.^{13, 14} La figure II-2-14 montre le spectre du Ti:Saphir sous l'injection d'une diode fonctionnant à deux longueurs d'onde alternativement.

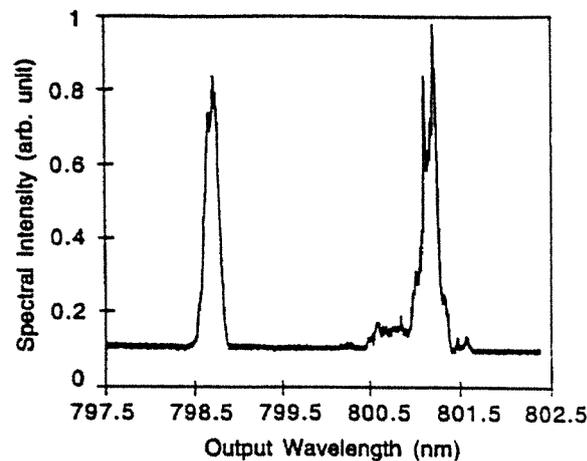


Fig. II-2-14. Spectre du Ti:Saphir sous l'injection d'une diode fonctionnant à deux longueurs d'onde alternativement

II.2.3 Oscillateur femtoseconde Ti:Saphir à auto-blocage de modes pour une chaîne d'amplification à dérivée de fréquence

Blocage de modes (mode-locking) passif est la méthode la plus efficace pour produire des impulsions ultra-courtes dans le domaine des femtosecondes.²³ Cette méthode marche initialement sur des lasers à colorant comportant un milieu d'absorbant saturable dont la dynamique de saturation combinée avec celle du gain conduisent au régime de blocage de modes. Ces lasers sont désignés sous le nom de Colliding Pulse Mode-locked dye laser (CPM) et produisent des impulsions de durées inférieures à 100 fs.^{24, 25}

La découverte de l'auto-blocage de modes dans un laser à Ti:Saphir en 1991²⁶ a révolutionné le mode des lasers ultra-courts, et permis aujourd'hui une généralisation de l'utilisation de ce type de laser non seulement en Physique mais aussi dans les domaines comme la Chimie ou la Biologie. Des impulsions aussi courtes que 6,5 fs sont maintenant produites directement dans des oscillateurs à Ti:Saphir.²⁷

Qualifié de 'magic mode-locking' au départ, l'auto-blocage de modes a été très vite interprété comme dû à l'auto-focalisation dans le cristal Ti:Saphir du faisceau intra-cavité induite par l'effet Kerr, d'où le nom de Kerr Lens Mode-locking (KLM).²⁸ En fait, dans certaines configurations l'auto-focalisation produite sur des impulsions courtes modifie les paramètres spatiaux du faisceau et diminue sa perte dans la cavité. Cette diminution de perte permet le régime à modes bloqués d'être favorisé par rapport au régime continu qui subit plus de perte. L'installation d'une fente dans la cavité à l'endroit où le faisceau à modes bloqués se rétrécit facilite la discrimination et stabilise le régime à modes bloqués.

L'amplification de ces impulsions ultra-courtes a été démontrée assez rapidement.²⁹ Des impulsions femtosecondes ont été d'abord étirées temporellement d'un facteur de 2600 dans un étireur à réseaux.³⁰ Elles sont ensuite injectées dans un amplificateur régénératif³¹ à Ti:Saphir. Les impulsions amplifiées sont compressées dans un compresseur à réseaux.³² Les auteurs obtiennent à la sortie du compresseur, des impulsions à 105 fs à une énergie de 1,1 mJ. Ce principe de l'amplification est actuellement utilisé dans les chaînes d'amplification commerciales et est connu sous le nom de Chirped Pulse Amplification (CPA).⁴

II.2.3.a Configuration de la cavité Ti:Saphir construite au LASIM

Nous avons réalisé un oscillateur Ti:Saphir à blocage de modes pour injecter dans une chaîne d'amplification commerciale construite par la division BMI de la société Thomson. C'est une cavité standard repliée en X (Fig. II-2-15) pompé par un Nd:YVO₄ laser doublé intra-cavité (LBO) pompé par diodes.

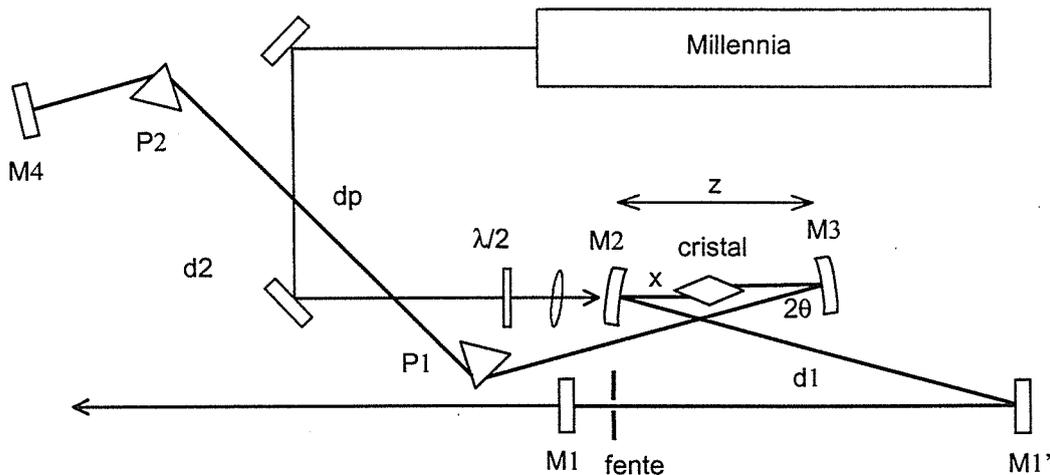


Fig. II-2-15. Cavité laser Ti:Saphir à auto-blocage de modes.

Les composants utilisés dans la cavité sont listés ci-dessous avec leurs spécifications :

- cristal Ti:Saphir, longueur 8 mm, section 4 x 4 mm², coupées Brewster/Brewster, absorption à 532 nm ~ 95%, FOM > 250, fournisseur CASIX, enveloppé d'une feuille d'Indium et monté dans un support en cuivre, le support est refroidi à eau à une température de 18°C ;
- fente réglable micrométrique ;
- P1 et P2 prismes SF10 ;
- M1, miroir de sortie, T = 7% ;
- M1' miroir plan HR ;
- M2 et M3 miroirs sphériques, Roc = 101,89 mm, substrat : ménisques Melles Griot, traitement Layertech HT 532 nm , HR 800-900 nm ;
- M4 miroir plan HR, monté sur un haut-parleur mince.

Le cristal, les miroirs M2 et M3, les prismes P1 et P2, et la fente sont montés sur des platines de déplacement micrométrique.

Le laser de pompe est un laser Millennia de chez Spectra-Physics. Il fournit 5 W maximal, la polarisation du faisceau de sortie est tournée de 90° par une lame demi-onde. Le faisceau est focalisé par un doublet $f = 120$ mm sur le cristal. Le doublet est monté sur un ensemble de déplacement x-y-z micrométrique. La lentille est légèrement inclinée ($\sim 6^\circ$) pour compenser l'astigmatisme introduit par le cristal sur le faisceau de pompe.^{33, 34}

Les paramètres géométriques de la cavité sont les suivants :

- la longueur du bras court, $d1 = 61,5$ cm ;
- la longueur du bras long, $d2 = 78,5$ cm ;
- la distance entre M2 et la facette du cristal, $x = 49$ mm ;
- la distance entre les deux miroirs sphériques, $z = 108$ mm ;
- la longueur totale de la cavité 1,518 m ;

- la distance entre les prismes, $d_p = 43.5$ cm ;
- l'angle de pliage, $\theta = 9,6^\circ$;

L'angle de pliage est calculé pour compenser l'astigmatisme introduit par le cristal.³⁵

II.2.3.b Simulation avec les matrices ABCD nonlinéaires

Le comportement de cette cavité peut être simulé par le formalisme de matrice ABCD.³⁶ Pour inclure l'effet Kerr induit dans le cristal amplificateur, une analyse par matrice nonlinéaire est développée par V. Magni et al.³⁷⁻⁴⁰ Cette méthode est à la fois simple et puissante pour prédire les paramètres favorables au régime de l'auto-blocage de modes par l'effet Kerr.

Dans cette méthode une cavité dépliée est utilisée (Fig.II-2-16).

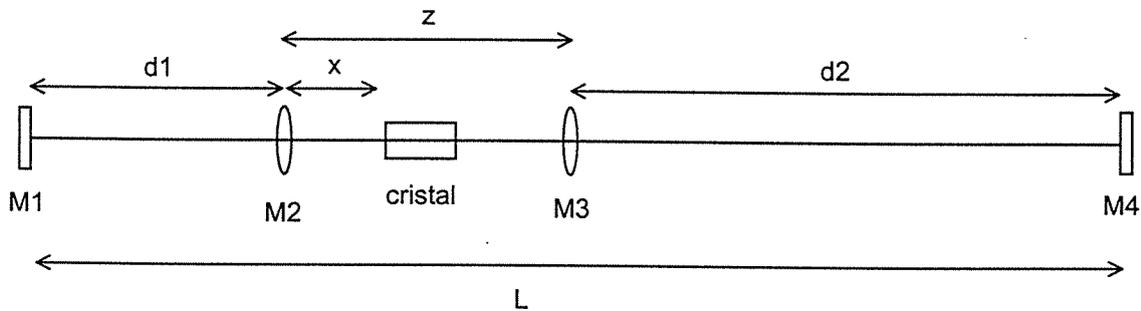


Fig. II-2-16. Cavité dépliée, les deux miroirs sphériques sont remplacés par deux lentilles à $f=R_{oc}/2$.

Pour quantifier l'effet de la lentille Kerr, on calcule la variation de la taille du spot laser sur le miroir M1 avec la puissance intra-cavité: $\delta = \left(\frac{1}{w} \frac{dw}{dp} \right)_{p=0}$.³⁷ Expérimentalement une fente est

placée devant le M1, donc une valeur négative de cette variation permet le régime à blocage de modes d'avoir moins de perte donc d'être favorisé. Les paramètres les plus sensibles sont la distance entre les deux miroirs sphériques M2 et M3, z , et celle entre le miroir M2 et la facette d'entrée du cristal, x . La figure II-2-17 présente un calcul pour une cavité avec un cristal Ti:Saphir de longueur 10 mm, et les paramètres suivants : $d_1 = 700$ mm, $d_2 = 900$ mm et $R_{oc} = 100$ mm.

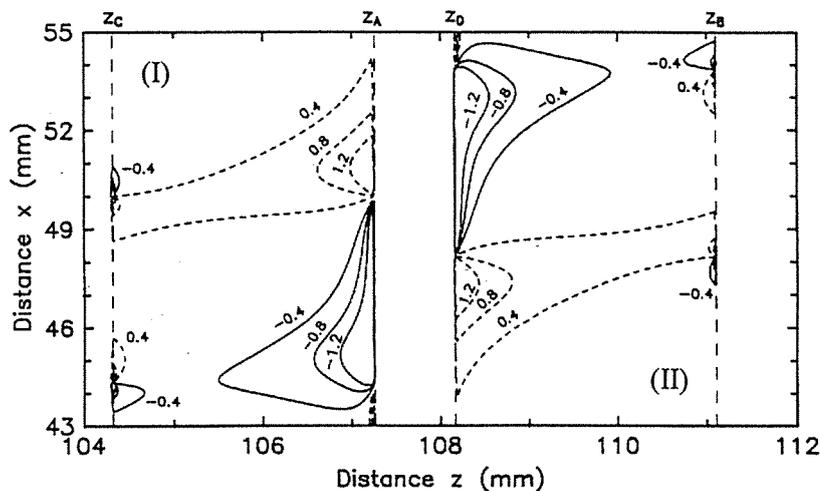


Fig. II-2-17. Lignes des contours à valeur δ égale en fonction de z et x , d'après la référence 38.

Ici on voit apparaître les deux zones de stabilité caractéristiques des cavités asymétriques ($d_1 \neq d_2$). Il y a deux zones principales à δ négative. Elles sont regroupées sur les limites des zones stables. Même si le blocage de modes peut se produire dans toutes les deux zones, le choix n'est pas arbitraire. D'abord, dans une cavité asymétrique avec un miroir de sortie au bout du bras le plus court, travailler sur à la limite de la zone à distance z plus petite (zone I) permet d'obtenir un faisceau de sortie moins divergeant (faisceau de taille plus grande). De plus, pour une cavité pompée par un seul faisceau de pompe à travers le miroir M2, un décalage du cristal vers la lentille de focalisation améliore le recouvrement entre la pompe et le mode laser et augmente donc l'efficacité du laser.^{41, 42} Ce décalage correspond justement à la zone à δ négative dans la zone de stabilité I. Il y a d'autres arguments favorisant la zone I, comme un déplacement de waist vers le centre du cristal quand la puissance laser augmente,⁴² ou l'effet d'une lentille due à la saturation de gain qui permet un auto-démarrage du Kerr lens mode-locking.⁴³ Il est évident que si l'asymétrie s'inverse ($d_1 > d_2$), alors la zone II devient plus intéressante.

II.2.3.c Procédure d'alignement du régime à blocage de modes

Une simulation de notre cavité montre la zone I de stabilité à $105,2\text{mm} < z < 108,6\text{ mm}$, et la zone II à $109,7\text{ mm} < z < 113,1\text{ mm}$. L'oscillateur est d'abord aligné en continu au milieu de la zone I. Les deux zones sont repérées précisément en mesurant la puissance de sortie en fonction du déplacement du miroir M2 (avec une graduation micrométrique). Pour optimiser la puissance de sortie, le cristal est décalé par rapport au centre des deux miroirs sphériques vers le miroir M2 ($\sim 1\text{mm}$, $x \sim 49\text{mm}$). Typiquement on obtient 380 mW pour 4,65 W de pompe.

Pour trouver la configuration favorable au régime à blocage de modes, on éloigne le miroir M3 pour s'approcher de la limite de cette zone. La fente est légèrement fermée (ouverture $\sim 1\text{mm}$). Le miroir M4 est agité en permanence, en déplaçant finement le miroir M3, on observe à l'aide d'une photodiode et un oscilloscope, une zone ($\sim 100\mu\text{m}$ de large autour de $z \sim 108\text{ mm}$) où l'intensité dans la cavité fluctue beaucoup (battements). On tourne alors finement le miroir M4 dans le sens horizontal ou vertical. En regardant sur l'oscilloscope, on voit apparaître soudain un train d'impulsions, c'est le signe d'un blocage de modes. Ce mode est en suite optimisé en ajustant finement les miroirs M1, M4, les prismes et la fente.

Le mode spatial à la sortie est quasiment TEM00, alors si le laser repasse au régime continu, le mode consiste en plusieurs tâches alignées dans le sens vertical, (en général 4 tâches, 2 intenses au milieu, et 2 plus faibles en haut et en bas). Dans ce cas-là il suffit de taper délicatement sur le miroir M4 pour que le laser redevienne en blocage de modes. Le démarrage peut être aussi effectué par l'agitation du haut-parleur collé derrière le miroir M4.

Le spectre du laser est observé sur un spectromètre compact couplé à une barrette CCD (Ocean Optics). On élargit le spectre en déplaçant les deux prismes et en ajustant l'ouverture de la fente. On obtient un résultat satisfaisant ($\sim 13\text{ nm}$ à $\lambda = 810\text{ nm}$) pour un trajet du faisceau dans les deux prismes de $\sim 1,5\text{ cm}$ (1 cm pour P1 et 0,5 pour P2). Les raies fines dans le spectre sont supprimées en ajustant les miroirs M4 et M1, ou en déplaçant la fente.

On obtient typiquement une puissance de 150 mW en régime à blocage de modes pour 4,65 W de pompe. L'augmentation de la puissance de pompe induit des composantes continues sur le spectre du régime à blocage de modes, ce qui signifie pour le miroir de sortie utilisé de transmission 7%, une puissance de pompe de 4,65 W est optimale. Une puissance de pompe plus importante peut être utilisée avec un coupler de transmission plus élevée, et on obtiendra dans ce cas-là une puissance de sortie en modes bloqués plus élevée.

II.2.3.d Principales caractéristiques de l'oscillateur et de la chaîne d'amplification

La figure II-2-18 montre un train d'impulsions. L'intervalle entre les impulsions est égal au temps d'aller-retour d'une impulsion dans la cavité.

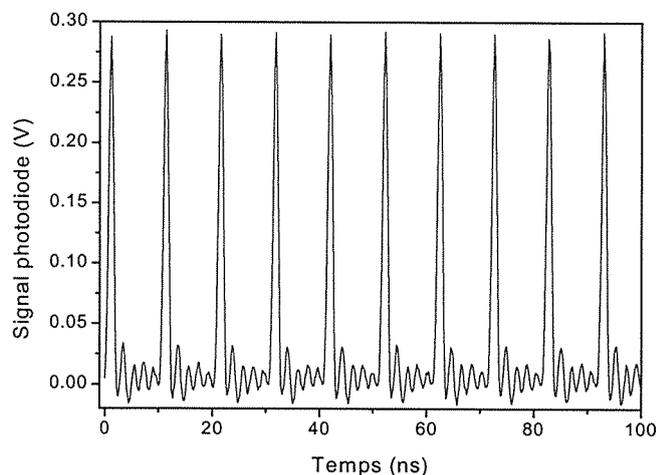


Fig. II-2-18. Signale de la photodiode rapide montrant le train d'impulsions.

Le spectre est une information importante montrant la qualité des impulsions. Notamment un spectre dont la largeur est inférieure à 10 nm (FWHM) injecté dans la chaîne d'amplification risque de l'endommager. Il faut aussi éviter du composant continu (pics étroits) dans un spectre large, ils sont aussi nuisibles pour la chaîne. La figure II-2-19 montre un spectre typique de l'oscillateur.

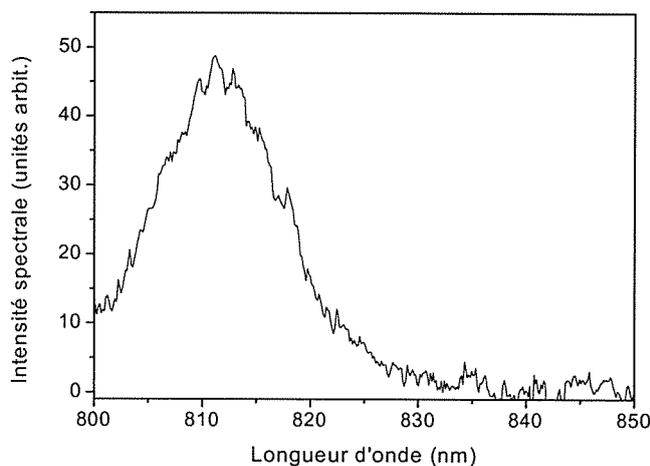


Fig. II-2-19. Spectre de l'oscillateur à blocage de modes, centré à 817 nm avec une largeur à mi-hauteur de 13,1 nm.

Un autocorrélateur est construit au laboratoire pour mesurer la durée des impulsions à la sortie de l'oscillateur. La figure II-2-20 montre une trace d'autocorrélation qui indique une durée d'impulsion de 75 fs (sech^2).

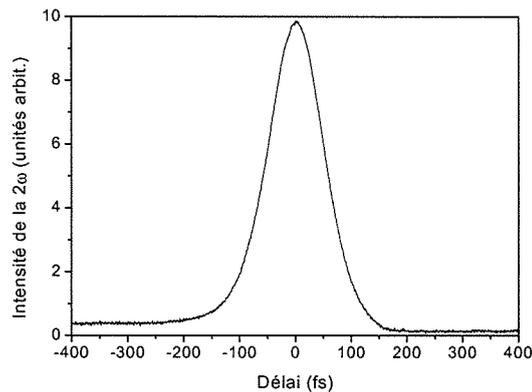


Fig. II-2-20. Trace d'autocorrélation montrant un temps d'autocorrélation Δt_{autoco} de 116 fs et une durée d'impulsion Δt_{sech^2} de 75 fs.

Pour une impulsion de forme $\text{sech}^2(t)$, on a la relation $\Delta t_{\text{autoco}} / \Delta t_{\text{sech}^2} = 1.543$.

Les impulsions délivrées par l'oscillateur sont de quelque nJ d'énergie mais leur puissance crête peut atteindre une dizaine de kW. Ces caractéristiques permettent déjà une panoplie d'expériences. Nous allons présenter plus loin dans la troisième partie de ce mémoire quelques expériences originales que nous avons réalisées avec un oscillateur femtoseconde.

Depuis décembre 1999, une chaîne d'amplification construite par la BMI est installée au laboratoire. Notre oscillateur est utilisé comme l'injecteur. C'est une chaîne à amplification d'impulsions à dérivée de fréquence (CPA), qui comporte un étireur, un amplificateur régénératif, un amplificateur multipassage, et un compresseur. La chaîne est pompée par un YAG pulsé (20 Hz) de chez Spectra-Physics (GCR 190-20).

A la sortie de la chaîne, on obtient des impulsions à une énergie de 8 mJ avec une durée de 120 fs. A cette énergie la puissance crête atteint une valeur de 65 GW. Avec cette puissance, le seuil d'ionisation de l'air ($\sim 10^{14}$ W/cm²) peut être atteint facilement. Il suffit de focaliser le faisceau (de diamètre 12 mm) par une lentille, et on observe autour du foyer un filament de plasma produit par ionisation multi-photonique. Cette formidable puissance induit aussi des phénomènes d'optique nonlinéaire, auto-modulation de phase, mélange à quatre ondes. Un continuum de lumière blanche est généré après le passage au foyer. En plaçant un écran derrière le foyer, on observe une tâche colorée, dont les couleurs sont rangées en anneaux comme montrée sur la figure II-2-21. La richesse de couleurs (spécialement du vert) indique une bonne compression des impulsions. C'est en regardant ces anneaux de couleur qu'on optimise le réglage du compresseur.

Application d'une telle chaîne laser est extrêmement large, dans la partie III de ce document, nous allons présenter nos travaux réalisés dans le domaine d'impulsions ultra-courtes et ultra-intenses.

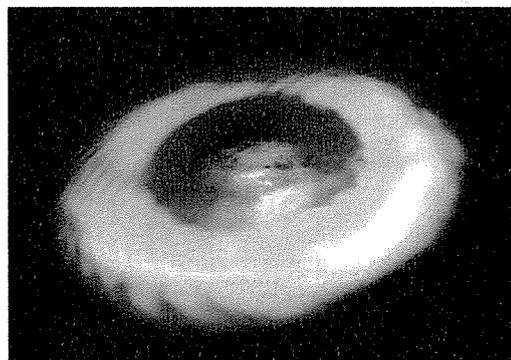


Fig. II-2-21. Photo prise sur un écran placé derrière le foyer d'un faisceau femtoseconde amplifié montrant la génération du continuum.

II.2.4 Lasers Cr:LiSAF pompés par diodes continue et à blocage de modes

La bande d'absorption rouge du Cr:LiSAF lui permet d'être pompé directement par diodes laser. En effet, des diodes laser AlGaInP émettant autour de 670 nm sont disponibles commercialement, et leur puissance atteint en général plusieurs centaines de mW. Cette propriété du Cr:LiSAF a suscité une grande quantité de travaux visant à développer un oscillateur femtoseconde compact.^{7, 41,42, 44-53} Au LASIM un laser à Cr:LiSAF a été développé pour étudier son potentiel d'application dans la détection des polluants atmosphériques.

II.2.4.a Configuration de la cavité Cr:LiSAF construite au LASIM

Remplacer les lasers de pompe habituels, argon ionisé ou YAG doublé par des diodes laser n'est pas une chose triviale. D'abord, les diodes de puissance ont une émission qui est loin d'être limitée par la diffraction, et qui présente un fort astigmatisme. Ensuite, le Cr:LiSAF et ses dérivés, LiSGaF, LiCAF..., souffrent d'une faible conductivité thermique.

Le point clé est donc de bien focaliser l'émission d'une diode sur le cristal pour avoir un recouvrement entre la pompe et le mode laser correct. Un mauvais recouvrement conduit à un chauffage du cristal et le phénomène de thermal quenching qui diminue l'efficacité du laser. Le choix des paramètres du cristal est aussi important. Pour améliorer le recouvrement entre la pompe et le mode laser, un fort dopage doit être utilisé avec un cristal court. Mais une concentration trop élevée augmente la charge thermique. Il faut donc trouver le compromis.

Dans notre laser, quatre diodes rouges (SDL-7430-C) émettant à 690 nm avec une puissance de 0,5 W par diode sont utilisées. Ces diodes de puissance ont une structure de ruban large. Leur surface émettrice est de 250 μm x 1 μm (largeur x hauteur) avec les angles de divergence de 6° et 40° respectivement. Un système optique est optimisé pour former une image nette de la surface émettrice tout en corrigeant l'astigmatisme. Son principe est très simple et est celui de la conservation d'étendue en Optique Géométrique : le produit entre la taille d'un faisceau optique au foyer et sa divergence est conservé dans toutes les transformations. Réduction de la taille conduit donc à l'augmentation de la divergence. Une réduction importante de la taille implique l'utilisation des lentilles à grande ouverture numérique (grand f-number). Pour corriger l'astigmatisme, le système comporte des lentilles cylindriques travaillant différemment le faisceau dans les deux directions. La focalisation finale est assurée par un triplet de distance focale de 118 mm (Fig.II-2-22). La tâche focalisée a une section de 102 μm x 68 μm , avec les angles de convergence 15° et 1° respectivement. On vérifie que l'image est obtenue sans beaucoup d'aberration. Cette configuration est un compromis entre une petite taille d'image et une convergence encore raisonnable.

Les quatre diodes sont regroupées en deux lignes de pompage. Chaque ligne est constituée par la superposition des faisceaux issus de deux diodes. Comme le faisceau a une section rectangulaire de hauteur beaucoup plus petite que la largeur, la superposition des deux faisceaux se fait avec un empilement des faisceaux en hauteur. Un miroir de forme rectangulaire est placé au croisement des deux faisceaux qui se propagent perpendiculairement. Sa hauteur est ajustée telle qu'un des deux faisceaux passe juste au-dessus et l'autre est réfléchi par la zone supérieure près de la bordure.

Le choix des paramètres du cristal et de la configuration de cavité sont imposés par les caractéristiques du faisceau de pompe. L'important angle de convergence nécessite un cristal de courte longueur avec un dopage fort. Mais un dopage fort conduit à un effet thermique plus important. Après plusieurs essais, nous avons choisi un cristal Cr:LiSAF (fournisseur VLOC) de longueur 5 mm et de dopage 2,3% Cr. Le rayon de courbure des miroirs de repli dans la cavité repliée en X est choisi à 150 mm pour un plus grand waist au niveau du cristal, ce qui permet un recouvrement correct entre la pompe et le mode laser.

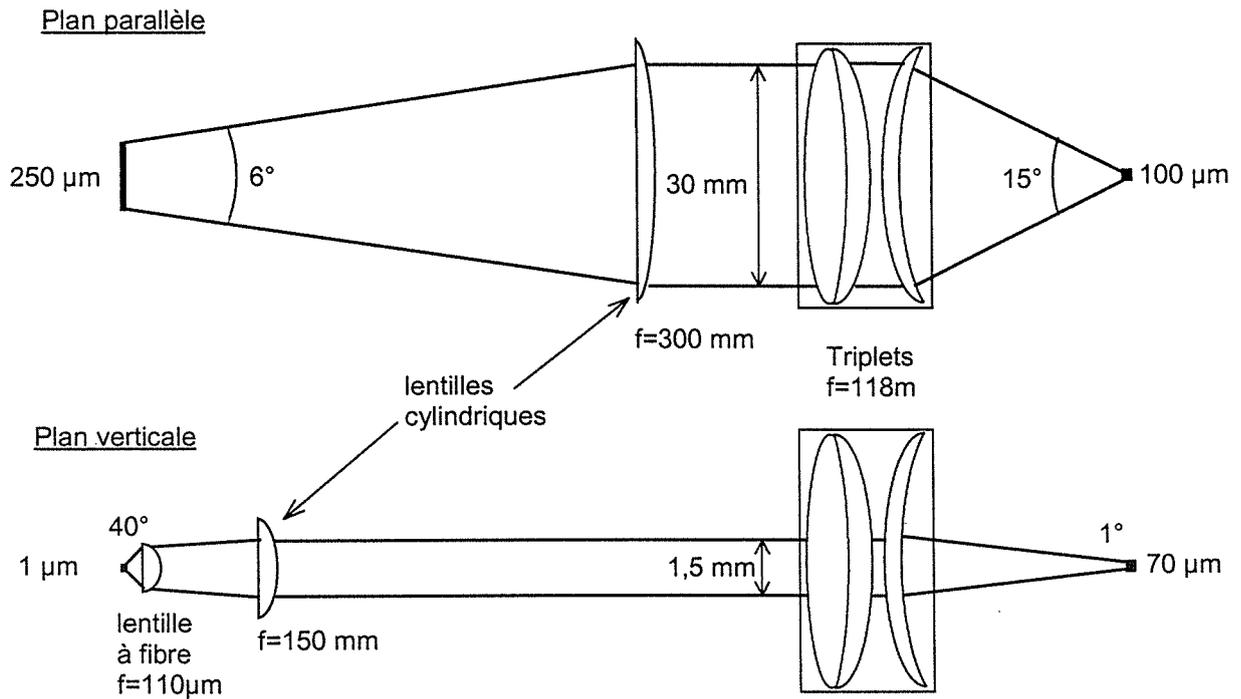


Fig. II-2-22. Mise en forme et focalisation du faisceau d'une diode laser.

Un cristal de Cr:LiSGaF de 4 mm de long (fournisseur VLOC) a été aussi essayé. Sa courte longueur et sa section efficace d'absorption plus faible nécessitent un dopage plus important de 3,5%

La cavité utilisée est similaire à celle montrée sur la figure II-2-15, seulement les deux bras sont de longueur identique (cavité symétrique $d_1=d_2=86\text{ cm}$). Les deux lignes de pompage sont focalisées sur les deux facettes du cristal à travers les miroirs de repli (M2 et M3). Le miroir de sortie a une transmission de 1% et les autres miroirs sont de HR entre 800 et 900 nm.

II.2.4.b Régime continu

Les performances en régime continu (les deux prismes sont enlevés) sont données sur la figure II-2-23.

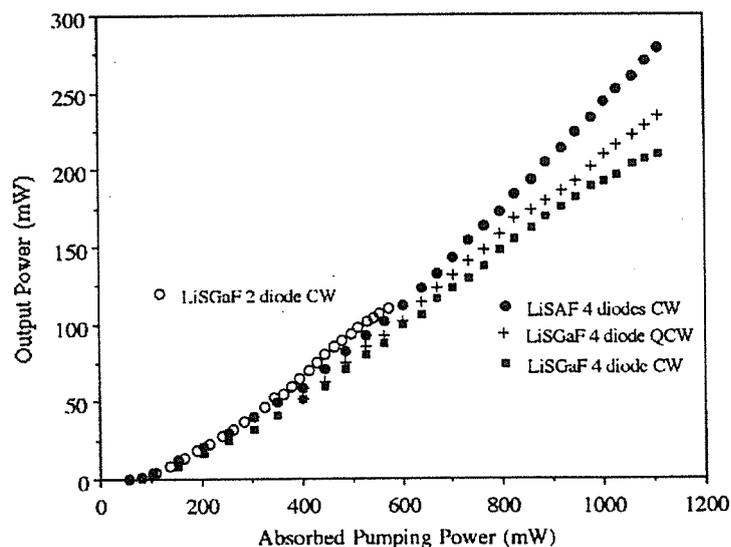


Fig. II-2-23. Puissances de sortie en régime continu en fonction de puissance de pompe absorbée.

On mesure un seuil de 70 mW, plus faible qu'avec un laser à Ti:Saphir. Pour le Cr:LiSAF la pente d'efficacité est de 26% et aucun effet thermique n'est observé au maximum de notre pompe. Pour le Cr:LiSGaF, la pente est de 24% et une diminution de l'efficacité laser due à l'effet thermique est observée à fort pompage. Un fonctionnement quasi-continu (pompe hachée) permet d'augmenter l'efficacité. Avec un prisme dans la cavité, la longueur d'onde peut être accordée entre 820 nm et 895 nm.

II.2.4.c Régime à blocage de modes

Pour le Cr:LiSAF pompé par diodes, le régime à blocage de modes est plus difficile à obtenir qu'avec le Ti:Saphir parce que d'une part son indice nonlinéaire est plus faible et surtout d'autre part le mode de pompage est assez médiocre. Pour pallier ces défauts, on utilise un miroir de sortie de transmission plus faible ($\sim 1\%$) et une cavité symétrique. Parce que la cavité symétrique permet un effet Kerr plus importante.^{40, 54} Mais en même temps la configuration symétrique est plus sensible à toutes perturbations et plus délicate à régler.

Un laser à Krypton ionisé est d'abord utilisé pour trouver la zone à fort effet Kerr et à optimiser le régime à blocage de modes. Une paire de prismes est insérée dans la cavité pour la compensation de dispersion. La position du cristal (x) et la distance entre les miroirs de repli (z) sont ajustées précisément selon les valeurs déterminées par la méthode des matrices nonlinéaires. Le miroir M4 est monté sur un haut-parleur mince dont l'agitation démarre le régime à blocage de modes. Ce régime est atteint à partir d'une puissance de pompe de 0,8 W. Pour une puissance de pompe typique de 1,2 W, on obtient des impulsions de durée de 120 fs avec une puissance moyenne de 100 mW et un taux de répétition de 100 MHz.

Avec la cavité optimisée pour l'effet Kerr, nous avons ensuite repassé au pompage à diodes. La mauvaise qualité des faisceaux de pompage nous a obligés de diminuer la transmission du miroir de sortie (R_{\max}) pour atteindre le régime à blocage de modes. On obtient dans ce cas-là une puissance de 10 mW à modes bloqués pour 1,1 W de pompe.

Pour obtenir une puissance plus importante, on peut utiliser des diodes plus brillantes, par exemple des diodes de chez Coherent, qui émettent 350 mW dans une surface émettrice de $50 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$, donc 3,5 fois plus brillantes que les diodes SDL. Néanmoins le développement du laser Nd:YVO₄ pompé par diode, tout aussi compact qu'une diode avec son optique de mise en forme et de focalisation, a rendu la voie du pompage directement par diode moins attrayante.

II.2.5 Spectromètre intra-cavité (ICLAS) avec un laser Cr:LiSAF pompés par diodes

En collaboration avec l'équipe du Professeur Frédéric Stoeckel à l'Université Joseph Fourier à Grenoble, nous avons utilisé notre laser Cr:LiSAF pompé par diodes dans une expérience de spectroscopie intracavité (ICLAS)^{55,56} pour la détection de gaz polluants à très faible concentration.

Un chopper mécanique est installé dans la cavité laser qui module la perte. Le faisceau de sortie passe par un modulateur acousto-optique, l'ordre 1 de la diffraction est injecté dans un spectromètre couplé à une barrette CCD. L'application d'une porte électronique synchronisée sur le chopper permet d'envoyer, pendant la période transitoire suite à l'ouverture de la cavité, une tranche ($\sim 20 \mu\text{s}$) de faisceau laser au spectromètre, où son contenu spectral est analysé. En reculant cette porte, on analyse le spectre d'une tranche de faisceau qui a été restée dans la cavité de plus en plus long temps. Son spectre est absorbé d'une façon plus importante par des gaz contenus naturellement ou introduits dans la cavité. On associe au temps de génération t_g (le temps d'établissement du régime continu) une distance équivalente d'absorption $L_{\text{eq}} = c \times t_g$.

En fonction de la plage de longueur d'onde d'émission du laser, un test est d'abord effectué sur les molécules H_2O contenues dans l'atmosphère. Une absorption intracavité est détectée autour de $0,83 \mu m$ pour une distance équivalente d'absorption de 150 km. Pour la détection de gaz polluants, nous avons choisi le méthane qui présente une bande de faible absorption autour de $0,88 \mu m$. Nous avons détecté l'absorption intracavité en introduisant du méthane dans un tube ouvert placé sur l'un des deux bras de la cavité. Un spectre d'absorption est montré sur la figure II-2-24. Une calibration nous permet de déterminer une sensibilité de détection de 2 ppm pour cette bande d'absorption. Néanmoins pour les bandes de forte absorption du méthane à $1,33 \mu m$ et $1,65 \mu m$, la sensibilité de cette méthode est estimée à 16 ppb et 1 ppb respectivement. Notre expérience montre donc la faisabilité d'un spectromètre à absorption intracavité compact et sensible qui est adapté pour des mesures sur le terrain.

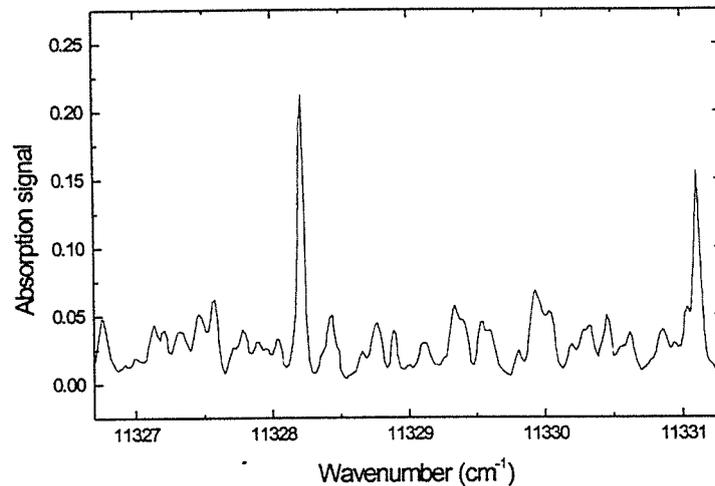


Fig. II-2-24. Spectre d'absorption intra-cavité du méthane contenu dans un tube ouvert.

II.2.6 Conclusion

Développer des lasers solides pour l'application à la détection de la pollution atmosphérique est une importante activité pendant les premières années après mon arrivée à Lyon.

C'était un changement de thématique assez important mais aussi proportionnellement très enrichissant. En quittant la communauté des physiciens qui travaillent dans le domaine des atomes froids, avec mes bagages de connaissance et de compétence acquises durant cinq années d'activités de recherche, j'ai pu aller voir d'autres choses. Je comprends mieux aujourd'hui ce que signifie le mot LASER, et je m'étonne moins devant l'extraordinaire richesse qu'a engendrée cette belle invention. C'est également pour moi une chance de travailler avec le laser dans toute sa diversité, des tout petits microscopiques aux plus grands, plus puissants. J'ai pu aussi explorer le contraste du laser, de l'ultra-stable donc spectralement pur à l'ultra-court donc temporellement défini, et constater à quel point un laser est capable de contenir d'une manière harmonieuse ces deux régimes aussi diagonalement opposés. J'estime que cette expérience est importante pour la suite de ma carrière, elle m'aide dans mes recherches actuelles mais elle peut aussi m'aider à m'orienter éventuellement vers des domaines nouveaux où une maîtrise du laser est un atout.

Les lasers que nous avons développés nous ont permis de réaliser des expériences originales. Ces expériences seront présentées en détail dans la troisième partie de ce mémoire.

Références :

1. T.H. Maiman, "Stimulated Optical Radiation in Ruby.", *Nature* **187**, 493-494 (1960).
2. P.F. Moulton, « Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al₂O₃ », *J.O.S.A. B* **3**, 125 (1986).
3. S.A. Payne, L.L. Chase, L.K. Smith, W.L. Kway and H.W. Newkirk, « Laser performance of LiSAF:Cr³⁺ », *J. Appl. Phys.* **66**, 1051 (1989) ; M.D. Perry, S.A. Payne, T. Ditmire, R. Beach, G.J. Quarles, W. Ignatuk, R. Olson, and J. Weston, « Better materials trigger Cr:LiSAF laser development », *Laser Focus World*, page 85, september 1993.
4. Catherine Le Blanc, « Principe et réalisation d'une source laser terawatt femtoseconde basée sur le saphir dopé au titane. Caractérisation des impulsions produites et démonstration du régime d'intensité au niveau de 10¹⁸ W/cm². », thèse de Doctorat de l'Ecole Polytechnique, Palaiseau 1993. Cette thèse est aussi publiée dans les *Annales de Physique*, **19**, 1-158 (1994).
5. W.R. Rapoport and Chandra P. Khattak, « Titanium sapphire laser characteristics », *Appl. Optics*, **27**, 2677 (1988).
6. S.A. Payne, L.K. Smith, R.J. Beach, B.H.T. Chai, J.H. Tassano, L.D. DeLoach, W. L. Kway, R. W. Solarz, and W. F. Krupke, « Properties of Cr:LiSrAlF₆ crystals for laser operation », *Appl. Optics*, **33**, 5526 (1994).
7. J.M. Evans, D.E. Spence, and W. Sibbett, « 50-fs pulse generation from a self-mode-locked Cr:LiSrAlF₆ laser », *Opt. Lett.* **17**, 1447 (1992) ; M. Sheik-Bahae, D.C. Hutchings, D.J. Hagan, and E.W. Van Stryland, *IEEE J. Quantum Electron.* **27**, 1296 (1990).
8. François Balembois, « Développement de nouvelles sources laser accordables dans l'infrarouge proche autour du cristal de LiSAF dopé avec l'ion Cr³⁺ », thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, Orsay (1994).
9. Franck Falcoz, « Lasers Cr³⁺:LiSAF pompés par diodes », thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, Orsay (1996).
10. M. Stalder, M. Bass, and B.H.T. Chai, « Thermal quenching of fluorescence in chromium-doped fluoride laser crystals », *J. Opt. Soc. Am.* **9**, 2271 (1992).
11. R.M. Measures, « Laser Remote Sensing », Krieger Publishing Company, Malabar, Florida (1992).
12. M. Ulbricht, P. Rairoux, J. Reif, D. Weidauer, and J.P. Wolf, « Calibration procedures of lidar systems », in *Optical Sensing in Environmental Monitoring*, Proc. SPIE vol. **2112**, 194 (1993).
13. J.P. Wolf, « 3D monitoring of air pollution using mobile all solid state lidar systems », *Opt. Photon. News*, **6**, 27 (1995).
14. J.P. Wolf, M. Douard, K. Fritzsche, P. Rairoux, G. Schubert, M. Ulbricht, D. Weidauer, and L. Wöste, « All solid state lidar systems », in *Optical Sensing in Environmental Monitoring*, Proc. SPIE vol. **2112**, 200 (1993).
15. N.S. Higdon, E.V. Browell, P. Ponsardin, B. E. Grossmann, C.F. Butler, T.H. Chyba, M. Neale Mayo, R.J. Allen, A.W. Heuser, W.B. Grant, S. Ismail, S.D. Mayor, and A.F. Carter, « Airborne differential absorption lidar system for measurements of atmosphere water vapor and aerosols », *Appl. Optics*, **33**, 6422 (1994).
16. Y.K. Park, G. Giuliani, and R.L. Byer, « Stable single-axial-mode operation of an unbalanced-resonator Nd:YAG oscillator by injection locking », *Opt. Lett.* **5**, 96 (1980).
17. Randal L. Schmitt and Larry A. Rahn, « Diode-laser-pumped Nd:YAG laser injection seeding system », *Appl. Optics*, **25**, 629 (1986).
18. K. Choi, S.H. Lin, E. Korevaar, and C.S. Liu, « A Q-switched alexandrite laser injection seeded by a rubidium absorption frequency matched diode laser », *Optics Commun.* **88**, 385 (1992).

19. D. Bruneau, T.A. des Lions, P. Quaglia and J. Pelon, « Injection-seeded pulsed alexandrite laser for differential absorption lidar application », *Appl. Optics* **33**, 3941 (1994)
20. T.D. Raymond, and A.V. Smith, « Injection-seeded titanium-doped-sapphire laser », *Opt. Lett.* **16**, 33 (1991).
21. N.P. Barnes and J. C. Barnes, « Injection seeding I : Theory », *IEEE J. Quantum Electron.* **29**, 2670 (1993) ; J. C. Barnes, N.P. Barnes, L.G. Wang, and W. Edwards, « Injection seeding II : Ti:Al₂O₃ experiments », *IEEE J. Quantum Electron.* **29**, 2684 (1993).
22. Y. Boucher, P. Georges and A. Brun, J.P. Pocholle and M. Papuchon, « Seeding of a titanium sapphire oscillator by a vertical-cavity surface-emitting laser in the nanosecond range », *Appl. Phys. Lett.* **65**, 804 (1994).
23. Stage « Impulsions Lasers Ultra-Courtes Génération, Caractérisation et Applications » , organisé par le Centre National Impulsions Laser Ultra-Courtes (CNILUC), Bordeaux.
24. R.L. Fork, C.V. Shank, R.T. Yen, and C. Hirlimann, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-19**, 500 (1983).
25. C.V. Shank, and C. Hirlimann, *Helv. Phys. Acta*, **56**, 373 (1983).
26. E.D. Spence, P.N. Kean, and W. Sibbett, « 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:Sapphire laser », *Opt. Lett.*, **16**, 42 (1991).
27. I.D. Jung, F.X. Kärtner, N. Matuschek, D.H. Sutter, F. Morier-Genoud, G. Zhang, and U. Keller, V. Scheuer, M. Tilsch, and Tschudi, « Self-starting 6.5-fs pulses from a Ti:Sapphire laser », *Opt. Lett.*, **22**, 1009 (1997).
28. François Salin and Jeff Saquier, Michel Piché, « Mode locking of Ti:Sapphire lasers and self-focusing : a Gaussian approximation », *Opt. Lett.*, **16**, 1674 (1991).
29. Jeff Saquier, François Salin, and Gerard Mourou, « 100-fs pulse generation and amplification in Ti:Sapphire », *Opt. Lett.*, **16**, 324 (1991).
30. O. E. Martinez, « 3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion : Application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region », *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-23**, 59 (1987). J.E. Murray, and W.H. Lowdermilk, *J. Appl. Phys.* **51**, 3548 (1980).
31. J.E. Murray and W.H. Lowdermilk, *J. Appl. Phys.*, **51**, 3548 (1980).
32. E. Treacy, « Optical pulse compression with diffraction gratings », *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-5**, 454 (1969).
33. Natalia Del Fatti, « Dynamique électronique femtoseconde dans les systèmes métalliques massifs et confinés », Thèse de Doctorat de l'Ecole Polytechnique en Sciences Physiques, Palaiseau (1999) ;
34. K.H. Lin and W.F. Hsieh, « Analytical design of symmetrical Kerr-lens mode-locking laser cavities », *Journ. Opt. Soc. Am. B* **11**, 737 (1994).
35. Herwig W. Kogelnik, Erich P. Ippen, Andrew Dienes and Charles V. Shank, « Astigmatically compensated cavities for cw dye lasers », *IEEE Journ. Quantum Electron.* **QE-8**, 373 (1972).
36. A.E. Siegmann, « Lasers », University Science Books, Mill Valley, California (1986).
37. Vittorio Magni, Giulio Cerullo and Sandro De Silvestri, « ABCD matrix analysis of propagation of gaussian beam through Kerr media », *Opt. Commun.* **96**, 348 (1993).
38. Vittorio Magni, Giulio Cerullo and Sandro De Silvestri, « Closed form gaussian beam analysis of resonator containing a Kerr medium for femtosecond lasers », *Opt. Commun.* **101**, 365 (1993).
39. G. Cerullo, S. De Silvestri, V. Magni and L. Pallaro, « Resonator for Kerr-lens mode-locked femtosecond Ti:Sapphire lasers », *Opt. Lett.* **19**, 807 (1994).
40. G. Cerullo, S. De Silvestri, and V. Magni, « Self-starting Kerr-lens mode locking of a Ti:Sapphire laser », *Opt. Lett.* **19**, 1040 (1994).

41. Sadao Uemura, Kenzo Miyazaki, « Femtosecond Cr:LiSAF laser pumped by a single diode laser », *Optics Commun.*, **138**, 330 (1997).
42. M.J.P. Dymott and A.I. Ferguson, « Self-mode-locked diode-pumped Cr:LiSAF laser », *Opt. Lett.* **19**, 1988 (1994).
43. Ming Lai, « Self-starting, self-mode-locked Ti:Sapphire laser », *Opt. Lett.* **19**, 722 (1994).
44. A. Miller, P. LiKamWa, B.H.T. Chai, and W. Van Stryland, « Generation of 150-fs tunable pulses in Cr:LiSrAlF₆ », *Opt. Lett.* **17**, 195 (1992).
45. N.H. Rizvi, P.M.W. French, and J.R. Taylor, « 50-fs pulse generation from a self-starting cw passively mode-locked Cr:LiSrAlF₆ laser », *Opt. Lett.* **17**, 877 (1992).
46. N.H. Rizvi, P.M.W. French, and J.R. Taylor, P.J. Delfyett and L.T. Florez, « Generation of pulses as short as 93 fs from self-starting femtosecond Cr:LiSrAlF₆ laser by exploiting multi-quantum-well absorbers », *Opt. Lett.* **18**, 983 (1993).
47. P.M.W. French, R. Mellish, and J.R. Taylor, P.J. Delfyett and L.T. Florez, « Mode-locked all-solid-state diode-pumped Cr:LiSAF laser », *Opt. Lett.* **18**, 1934 (1993).
48. D. Kopof, K.J. Weingarten, L.R. Brovelli, M. Kamp, and U. Keller, « Diode-pumped 100-fs passively mode-locked Cr:LiSAF laser with an antiresonant Fabry-Perot saturable absorber », *Opt. Lett.* **19**, 2143 (1994).
49. Michael J.P. Dymott and Allister I. Ferguson, « Self-mode-locked diode-pumped Cr:LiSAF laser producing 34-fs pulses at 42-mW average power », *Opt. Lett.* **20**, 1157 (1995).
50. Franck Falcoz, François Balembois, Patrick Georges, and Alain Brun, « Self-starting self-mode-locked diode-pumped Cr:LiSAF laser », *Opt. Lett.* **20**, 1874 (1995).
51. D. Kopof, A. Prasad, G. Zhang, M. Moser, and U. Keller, « Broadly tunable femtosecond Cr:LiSAF laser », *Opt. Lett.* **22**, 621 (1997).
52. G.J. Valentine, J.M. Hopkins, P. Loza-alvarez, G.T. Kennedy, and W. Sibbett, D. Burns, A. Valster, « Ultralow-pump-threshold femtosecond Cr³⁺:LiSrAlF₆ laser pumped by a single narrow-stripe AlGaInP laser diode », *Opt. Lett.* **22**, 1639 (1997).
53. I.T. Sorokina, E. Sorokina, and E. Wintner, A. Cassanho, H.P. Jenssen, R. Szipöcs, « 14-fs pulse generation in Kerr-lens mode-locked Cr:LiSGaF and Cr:LiSAF lasers : observation of pulse self-frequency shift », *Opt. Lett.* **22**, 1716 (1997).
54. C. Spielmann, P.F. Curley, T. Brabec and F. Krausz, « Ultrabroadband femtosecond lasers », *IEEE Journ. Quantum. Electron.* **30**, 1100 (1994).
55. A. Kachanov, A. Charvat, and F. Stoeckel, « Intracavity laser spectroscopy with vibronic solid-state lasers. I. Spectrotemporal transient behavior of a Ti:sapphire laser », *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2412 (1994) ; A. Kachanov, A. Charvat, and F. Stoeckel, « Intracavity laser spectroscopy with vibronic solid-state lasers. II. Influence of the nonlinear mode coupling on the maximum sensitivity of a Ti:sapphire laser », *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2412 (1994).
56. M.P. Frolov, and Yu. P. podmar'kov, « Intracavity laser spectroscopy with a Co:MgF₂ laser », *Opt. Commun.*, **155**, 313 (1998).

Nos publications sur ce travail :

1. J. Yu, M. Douard, P. Rambaldi, B. Vezin, and J.-P. Wolf, « Laser-diode injection seeding of a flashlamp-pumped Q-switched Ti:Al₂O₃ laser oscillator », *Opt. Commun.*, **132**, 263 (1996).
2. J. Yu, M. Douard, P. Rambaldi, B. Vezin, and J.-P. Wolf, « Laser-diode injection seeding of a flashlamp pumped Ti:Sapphire for Lidar applications », *Advanced in Atmospheric*

Remote Sensing with Lidar, A. Ansmann, R. Neube, P. Rairoux, U. Wendinger, Ed. Springer Verlag, Heidelberg, 463 (1996).

3. J. Yu, P. Rambaldi, and J.-P. Wolf, «Dual wavelength diode seeded Ti :Sapphire laser for DIAL applications », Appl. Opt. 36, 6864 (1997).

Rapports de stage soutenus sur ce travail dans notre équipe :

1. Emeric Fréjafon « Développement d'un laser solide pompé par diode laser et modélisation du régime femtoseconde », Stage du DEA Constituants Elémentaires, Université Lyon 1 – ENS Lyon, (1995).
2. M'Hamed Khaif «Optimisation d'un laser Cr:LiSAF en fonctionnement continu et en fonctionnemnt modes», Stage de la première année du Magistère Science de la Matière, Université Lyon 1– ENS Lyon, (1996).

Troisième Partie

Ultra-Courtes et Ultra-Intenses : Impulsions Femtosecondes à l'Exploration de la Matière

Chapitre III.1

Processus optiques dans des microcavités excités par des impulsions femtosecondes

III.1.1 Introduction

Dans l'espace confiné d'une microcavité, les processus optiques sont fortement modifiés par rapport à ceux qui se passent dans un matériau massif.¹ Une telle cavité consiste typiquement en une sphère ou un cylindre diélectrique avec un rayon de quelques dizaines de μm .

L'interface sphérique ou cylindrique délimitant la cavité joue ici un rôle essentiel. En effet, la lumière incidente subit des réfractions et des réflexions sur l'interface. La distribution de champ à l'intérieur de la microcavité dépend sensiblement de sa morphologie. Cette morphologie induit trois effets spécifiques aux microcavités.

Prenons l'exemple d'une gouttelette d'eau illuminée par un faisceau parallèle. Premièrement, on trouve une intensité intra-cavité fortement localisée dans deux zones sur le diamètre principal (défini par l'axe du faisceau incident) : l'une juste derrière la face illuminée, et l'autre juste à l'intérieur de la face cachée. Les intensités y sont respectivement 10 fois ou 100 fois plus élevées typiquement que celle incidente.

Deuxièmement, les résonances apparaissent quand la fréquence de l'onde incidente est accordée sur des modes propres de la microcavité. Ce sont des morphology-dependant resonances (MDR's)²⁻⁴ ou des modes de galerie. Dans un tel mode, la distribution du champ intra-cavité est une onde stationnaire,⁵ résultat d'une superposition des deux ondes qui sont piégées dans la cavité par des réflexions totales internes et qui se propagent dans les sens opposés. Une résonance apparaît lorsque après un tour dans la cavité, l'onde retrouve sa phase initiale. Une propriété remarquable des MDR's est que la distribution du champ est essentiellement contenue dans un anneau près de la surface de la sphère.

Troisièmement, l'émission d'une molécule est affectée par l'effet QED. Les émissions dans les modes MDR's sont amplifiées et celles en dehors de ces modes sont inhibées. Les émissions habituellement continues, comme la fluorescence ou la diffusion de Raman spontanée sont devenues discrètes. Les processus nonlinéaires, le laser ou la diffusion de Raman stimulée (SRS), ont un seuil diminué.

Un grand nombre d'études ont été consacrées aux processus optique linéaire ou nonlinéaires dans les microcavités : fluorescence,^{3,6} effet laser,⁷⁻⁹ diffusion de Raman stimulée (SRS),¹⁰⁻¹⁴ sommation de fréquence du troisième ordre (TSFG)^{15,16} en particulier la génération de la troisième harmonique (THG).¹⁷

Dans ce chapitre je présente d'abord la génération de la seconde harmonique dans un microcylindre de niobate de lithium. En suite nos travaux sur la distribution angulaire de la fluorescence émise par des molécules à l'intérieure d'une gouttelette sont présentés.

Les processus nonlinéaires d'ordre 2 ($\chi^{(2)}$), en particulier la génération de la seconde harmonique (SHG), n'ont encore pas été étudiés jusqu'à récemment à cause de la propriété de centro-symétrie des échantillons utilisés auparavant. L'élaboration de fibres monocristallines nonlinéaires de bonne qualité optique nous a permis d'observer la SHG dans une microcavité à section quasi-elliptique. Le but de cette expérience est d'étudier les caractéristiques du processus de doublage dans un échantillon cylindrique à diamètre de quelques dizaines de μm . Nous avons montré des propriétés spécifiques d'un microdoubleur se distinguant d'un cristal nonlinéaire volumique. Les échantillons s'agissent des fibres monocristallines de LiNbO_3 , elles ont été élaborées par l'équipe du Professeur Georges Boulon au LPCML à l'Université Claude Bernard-Lyon 1.

L'étude de la fluorescence émise par des molécules se trouvant à l'intérieur d'une gouttelette a un intérêt particulier pour l'application lidar. En effet les aérosols, microcavités naturelles suspendues dans l'atmosphère, jouent un rôle important dans les processus de pollution atmosphérique. Leurs détection et analyse restent encore difficiles, car les paramètres les caractérisant sont très nombreux (taille, forme, phase, composition...). Les processus optiques, linéaires comme nonlinéaires, sont susceptibles de donner des

informations pour caractériser les aérosols. Dans notre étude, nous avons montré que la forme sphérique d'une micro-gouttelette induit une anisotropie pour l'émission de fluorescence. Et cette anisotropie favorise la rétro-diffusion de la fluorescence. Cette étude a été menée en collaboration avec l'équipe du Professeur Richard K. Chang à Yale University aux Etats-Unis.

III.1.2. Propriétés d'un micro-doubleur en fibre de LiNbO₃ excité par impulsions femtosecondes

III.1.2.a Propriétés du cristal nonlinéaire de LiNbO₃

Le niobate de lithium (LiNbO₃) est l'un des cristaux nonlinéaires les plus importants. C'est un cristal uniaxial négatif. Les éléments non nuls dans le tenseur $\chi^{(2)}$ sont :¹⁸ $d_{22} = 3,07$ pm/V ; $d_{31} = 5,95$ pm/V ; $d_{33} = 34,4$ pm/V. Il est transparent entre 350 nm et 5500 nm.¹⁹ Les équations de Sellmeier sont données par :

$$n_o^2(\lambda) = 4,9048 + \frac{0,11768}{\lambda^2 - 0,04750} - 0,027169 \times \lambda^2$$

$$n_e^2(\lambda) = 4,5820 + \frac{0,099169}{\lambda^2 - 0,04443} - 0,021950 \times \lambda^2$$

, (λ en μm).

Pour le doublage, l'accord de phase peut être réalisé pour des longueurs d'onde plus grandes que $1\mu\text{m}$. Pour l'accord de phase du type I par l'angle, on détermine l'angle d'accord de phase, θ_m , par :

$$n_e(2\omega, \theta_m) = n_o(\omega) \Rightarrow \sin^2 \theta_m = \frac{\frac{1}{n_o^2(\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)}}{\frac{1}{n_e^2(2\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)}}$$

En dessous de $1\mu\text{m}$, l'accord de phase est impossible pour le niobate de lithium parce qu'on trouve $n_e(2\omega) > n_o(\omega)$. Le désaccord de phase est donné par

$$\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega}$$

Pour une onde plane, on peut définir une longueur de cohérence L_c : $L_c = 2/\Delta k$. Cette longueur donne la dimension de la zone d'interaction nonlinéaire à l'intérieur de laquelle l'onde à 2ω croît avec la distance, mais au-delà de celle, le flux d'énergie s'inverse et l'énergie de l'harmonique se reconvertit vers le fondamental.

III.1.2.b Dispositif expérimental

α . Elaboration des fibres de LiNbO₃

Les échantillons de fibres ont été élaborés par l'équipe des Professeurs Georges Boulon et Marie-Thérèse Cohen-Adad. La méthode LHPG (Laser Heated Pedestal Growth) a été employée.²⁰ Un faisceau laser CO₂ ($10,6\mu\text{m}$) est focalisé au bout d'un barreau de poudre compressée pour produire une zone fondue. On introduit un petit bout de monocristal de

niobate de lithium comme germe. Une fois le germe en équilibre avec la zone fondue, la fibre est tirée verticalement. La zone fondue est alimentée continûment par le barreau. Pour obtenir une fibre de diamètre d'environ $50\ \mu\text{m}$, la fibre est tirée avec une vitesse de $120\ \text{mm/heure}$, accompagnée par un mouvement de $10\ \text{mm/heure}$ du barreau de poudre. Les fibres monocristallines sont finalement traitées par un chauffage de 700°C pendant 3 heures sous oxygène.

Le barreau est préparé avec de la poudre de Johnson Matthey Co. La poudre est broyée et mélangée avec un agent agglomérant (Chemplex Spectroblend) avant d'être compressée sous une pression de $5000\ \text{kg/cm}^2$ en des pastilles de dimensions $50 \times 3 \times 3\ \text{mm}^3$. Les pastilles sont chauffées avec une température de 1210°C pendant 10 heures et sont finalement coupées en des barreaux de $50 \times 1 \times 1\ \text{mm}^3$.

La figure III-1-1 montre une photographie microscopique de la section d'une fibre. On voit une section quasiment elliptique avec deux pointes qui sont naturelles pour une fibre monocristalline de niobate de lithium. La fibre est tirée le long de l'axe cristallin a , l'axe c est le long du petit côté de l'ellipse, et l'axe b se trouve dans le plan xOy , faisant un angle de 30° par rapport à l'axe Oy . Les diamètres de la fibre sont déterminés par la diffraction d'un faisceau de HeNe à $63\ \mu\text{m}$ et $80\ \mu\text{m}$.

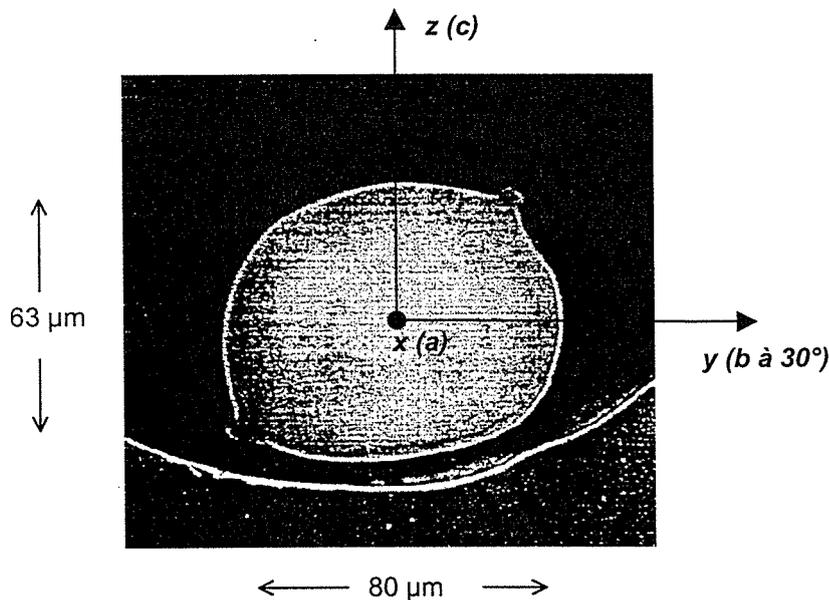


Fig. III-1-1. Section d'une fibre monocristalline de LiNbO_3 .

Une deuxième fibre de diamètres de $230\ \mu\text{m}$ et $292\ \mu\text{m}$ a été aussi tirée pour comparer avec la fibre plus fine.

β . Montage optique pour la caractérisation des fibres LiNbO_3

Le montage expérimental est illustré par la figure III-1-2. Un faisceau d'impulsions femtosecondes est focalisé par un doublet de $50\ \text{mm}$ de distance focale perpendiculairement sur la fibre (spot $30\ \mu\text{m}$ de diamètre). Il est délivré par un oscillateur Cr:LiSAF à modes bloqués dont les spécifications sont les suivantes : durée $150\ \text{fs}$, puissance moyenne $100\ \text{mW}$, cadence $92\ \text{MHz}$, et longueur d'onde centrale $850\ \text{nm}$. L'emploi des impulsions femtosecondes permet d'obtenir une puissance crête élevée sans déposer beaucoup d'énergie.

Cette caractéristique est essentielle, en effet dans le régime ps ou ns, la destruction de la fibre est immédiate si on focalise des impulsions laser sur celle-ci.

La seconde harmonique générée est détectée par un photomultiplicateur fixé sur le bras d'un goniomètre. Sa distribution angulaire peut être ainsi mesurée.

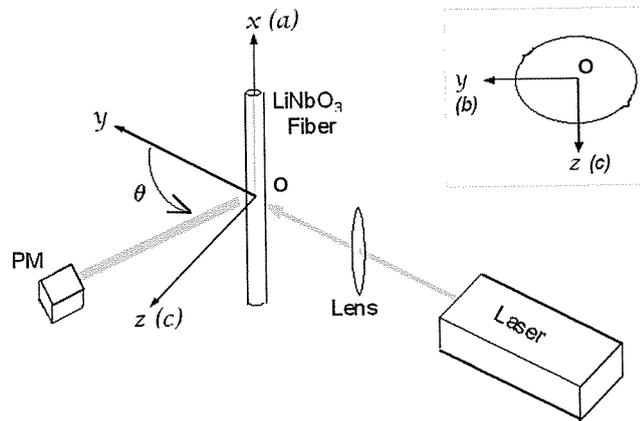


Fig. III-1-2. Montage expérimental.

III.1.2.c Résultats expérimentaux et discussions

La photographie suivante (Fig. III-1-3) montre la seconde harmonique générée et diffusée autour de la fibre.

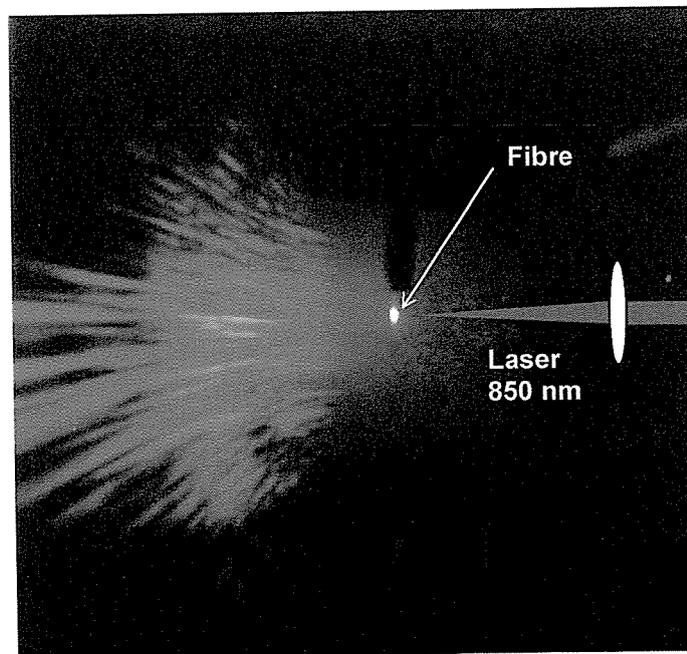


Fig. III-1-3. Observation de la seconde harmonique diffusée. La photographie est prise sur un écran blanc placé derrière la fibre.

α. Polarisation de la seconde harmonique

La seconde harmonique générée est d'abord analysée en polarisation. Le fondamental est envoyé suivant l'axe Oy ou l'axe Oz . Leur polarisation peut être horizontale ou verticale. Les résultats sont résumés au tableau III-1-1.

Direction de propagation	Polarisation du fondamental	Polarisation de la seconde harmonique détectée	Coefficient du couplage
Oy	e_z	e_z	d_{33}
	e_x	e_z	d_{31}
Oz	e_y	e_y	d_{22}
	e_x	e_y	d_{22}

Tab. III-1-1. Polarisations de la seconde harmonique et les coefficients de couplage.

La configuration la plus efficace correspond à un fondamental se propageant dans la direction Oy et polarisé selon Oz . Dans ce cas-là, le coefficient de couplage d_{33} est le coefficient le plus important. Le rapport entre les secondes harmoniques générées par les fondamentaux polarisés en z et en x donne en fait le carré du rapport d_{33}/d_{31} . Expérimentalement ce rapport est mesuré à 36, ce qui est très proche de sa valeur calculée : $(d_{33}/d_{31})^2 = 33,4$.

On observe ici la caractéristique d'un doublage sans accord de phase. Les intensités relatives des secondes harmoniques sont directement liées aux coefficients de couplage non linéaires.

β. Efficacité de conversion

Pour la configuration la plus efficace (propagation suivant Oy et polarisé selon Oz), l'intensité de la seconde harmonique est mesurée en fonction de celle du fondamental. Comme montrés sur la figure III-1-4, les points expérimentaux sont bien ajustés par une parabole.

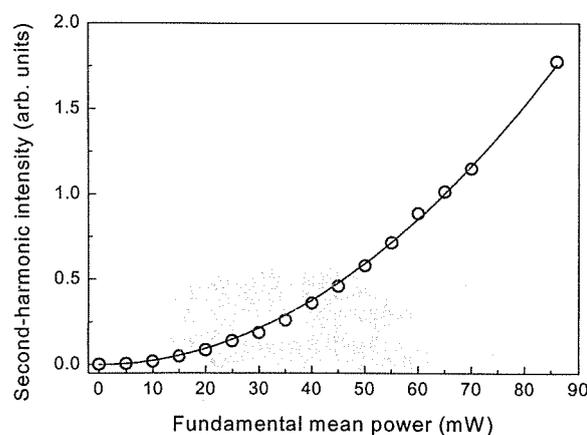


Fig. III-1-4. Intensité de la seconde harmonique en fonction de la puissance moyenne du fondamental.

L'efficacité de conversion, $P_{peak}(2\omega, \theta)/P_{peak}(\omega, \theta)$, est mesurée à plusieurs angles autour de la fibre pour une puissance moyenne du fondamental de 100 mW. Focalisée sur un spot de 30 μm , cette puissance moyenne correspond à une intensité crête de 10^9 W/cm^2 . Les résultats sont résumés au tableau III-1-2.

$\theta(^{\circ})$	0	45	90	135
Efficacité	$2,9 \times 10^{-4}$	$2,6 \times 10^{-4}$	$2,5 \times 10^{-4}$	$6,8 \times 10^{-4}$
Efficacité Moyenne	$3,7 \times 10^{-4}$			

Tab. III-1-2. Efficacité de conversion en fonction de l'angle de diffusion.

Avec les équations de Sellmeier, on peut calculer le désaccord de phase dans la configuration étudiée : $\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} = \frac{4\pi}{\lambda_{\omega}} [n_e(\omega) - n_e(2\omega)] = -1,975 \mu\text{m}^{-1} [n_e(850\text{nm}) = 2.1707, n_e(425\text{nm}) = 2.3043]$, ce qui correspond à une longueur de cohérence de $L_c = 1,01 \mu\text{m}$. Pour un cristal volumique sous la même condition d'excitation, l'efficacité de conversion peut être calculée et le résultat est montré sur la figure III-1-5. On voit une efficacité de conversion maximale à 2×10^{-4} et la diminution de l'efficacité au-delà de la longueur de cohérence.

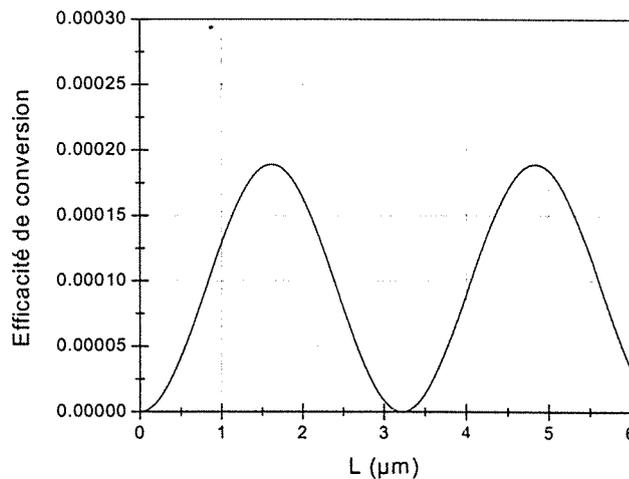


Fig. III-1-5. Efficacité de conversion pour un cristal volumique avec un désaccord de phase identique que dans la fibre.

Dans une fibre, l'efficacité d'un doublage sans accord de phase est plus grande que dans un cristal volumique. Cette augmentation de l'efficacité est due d'une part à la forte concentration de l'intensité à l'intérieur de la fibre et d'autre part à la forte convergence des rayons.

Pour comparaison, nous avons mesuré l'efficacité de conversion de la fibre aux diamètres 230 μm et 292 μm . Une valeur de $5,3 \times 10^{-5}$ a été trouvée, presque un ordre de grandeur inférieure à la valeur mesurée pour la fibre aux diamètres 63 μm et 80 μm .

χ . Distributions angulaires dans le plan perpendiculaire à la fibre

La distribution angulaire de la seconde harmonique est mesurée avec un PM compact fixé au bout du bras d'un goniomètre. On fixe le fondamental se propageant dans la direction Oy et sa polarisation selon Oz .

Pour la fibre aux diamètres $62 \mu\text{m}$ et $80 \mu\text{m}$, la seconde harmonique générée est diffusée aussi bien dans le plan perpendiculaire à la fibre (plan yOz) que celui contenant la fibre (plan xOy).

Dans le plan yOz la distribution angulaire de la seconde harmonique est présentée sur la figure III-1-6, en comparaison avec la distribution angulaire du fondamental.

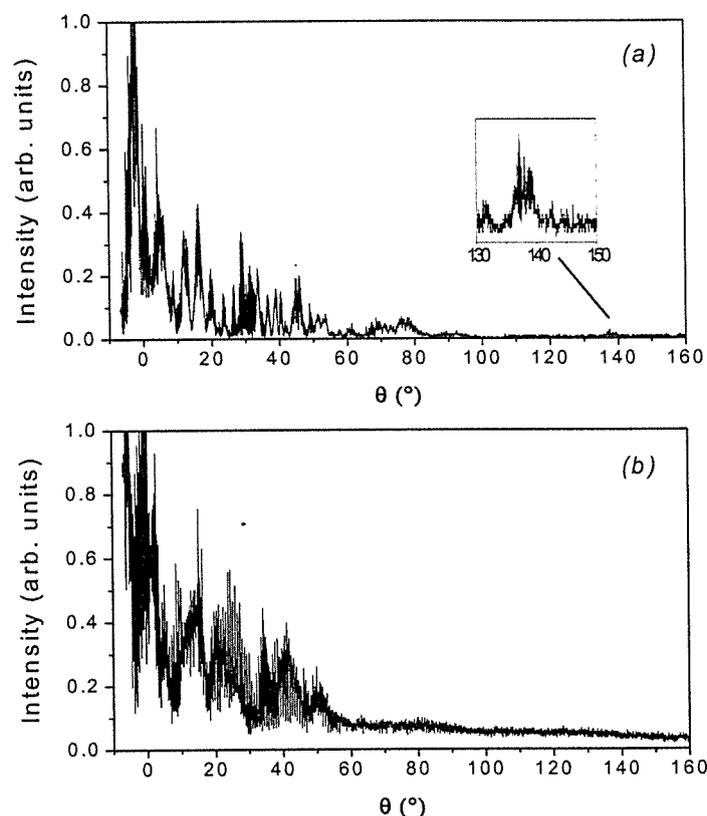


Fig. III-1-6. Distributions angulaires dans le plan perpendiculaire à la fibre.
(a) le fondamental, et (b) la seconde harmonique.

On remarque d'abord que le fondamental et la seconde harmonique sont diffusées principalement vers l'avant dans un cône de $\pm 45^\circ$ autour de la direction du faisceau incident. Mais pour la diffusion à grands angles et la rétro-diffusion, le fondamental et la seconde harmonique présentent des comportements différents. Pour le fondamental, à partir de 100° , on trouve une zone à intensité quasiment nulle. Cette zone est prédite par l'Optique Géométrique avec le traçage des rayons à l'intérieur d'une sphère ou d'un cylindre. Dans la littérature, cette zone est appelée « Alexander's dark band »,⁵ elle est délimitée par le premier et le deuxième arc-en-ciel. Le premier arc-en-ciel est visible dans notre enregistrement à $\theta = 140^\circ$ [Fig. III-1-3, (a)]. Par contre la seconde harmonique présente une distribution plutôt uniforme à partir de 90° jusqu'à la rétro-diffusion. Et on n'observe pas d'arc-en-ciel pour la seconde harmonique. Cette comparaison semble suggérer que la seconde harmonique soit générée vers l'avant. La génération devrait localiser près de la face cachée du cylindre où le

faisceau incident est focalisé. Une fois générée, la seconde harmonique est essentiellement diffusée vers l'avant. Mais une partie de celle-ci est piégée par le cylindre dans des modes de galerie et se propagent le long de la paroi. L'existence de ces modes est détectée par une distribution uniforme autour de la fibre.

δ. Distributions angulaires dans le plan contenant la fibre

Dans ce plan le fondamental n'est pas du tout diffusé comme on peut s'y attendre, par contre la seconde harmonique est largement diffusée. Les distributions angulaires dans ce plan sont montrées sur la figure III-1-7. On voit que la génération n'est pas colinéaire dans ce plan. La divergence de la seconde harmonique doit être expliquée par la condition d'accord de phase.

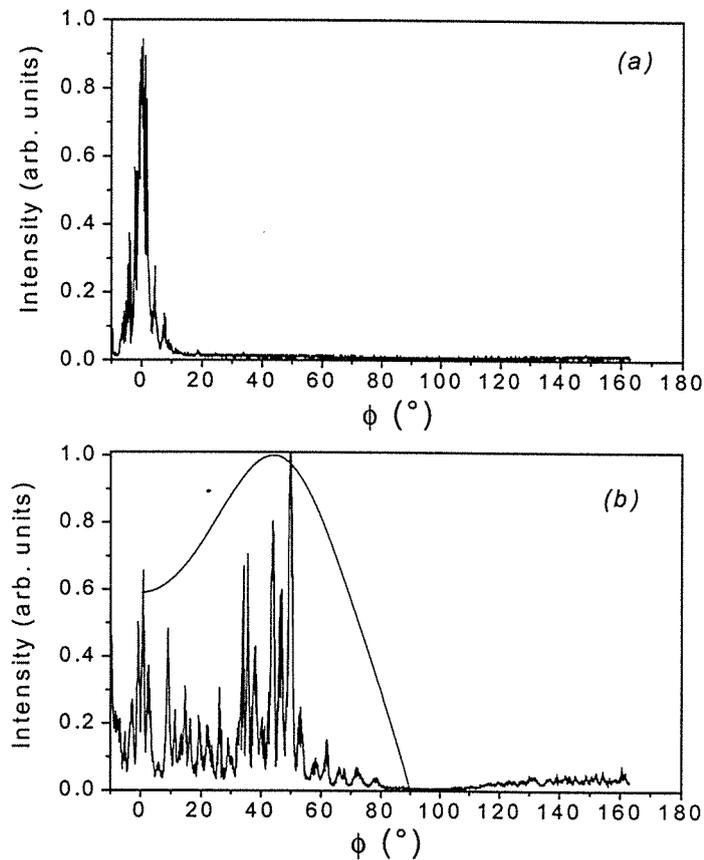


Fig. III-1-7. Distributions angulaires dans le plan contenant la fibre. a) le fondamental, et b) la seconde harmonique avec un fit théorique.

Puisque dans la configuration étudiée le désaccord de phase est négatif, $\Delta k = -1,975 \mu\text{m}^{-1}$, un accord de phase strict ne peut jamais être réalisé même dans une configuration non colinéaire.²¹ Pour interpréter le profile angulaire observé, nous proposons un quasi-accord de phase par projection dans la direction de propagation du fondamental.

Considérons le modèle illustré par la figure III-1-8 avec une lame mince de cristal de LiNbO_3 (épaisseur d , l'axe c perpendiculaire au plan de la page). Le fondamental traverse la lame en incidence normale sans être dévié, mais la seconde harmonique est générée dans le cristal dans une direction ϕ_{int} . Pour un certain angle la projection sur l'axe de propagation du fondamental du vecteur d'onde de la seconde harmonique est égale à la somme des deux vecteurs k_ω du fondamental. Il y a donc un quasi-accord de phase par projection.

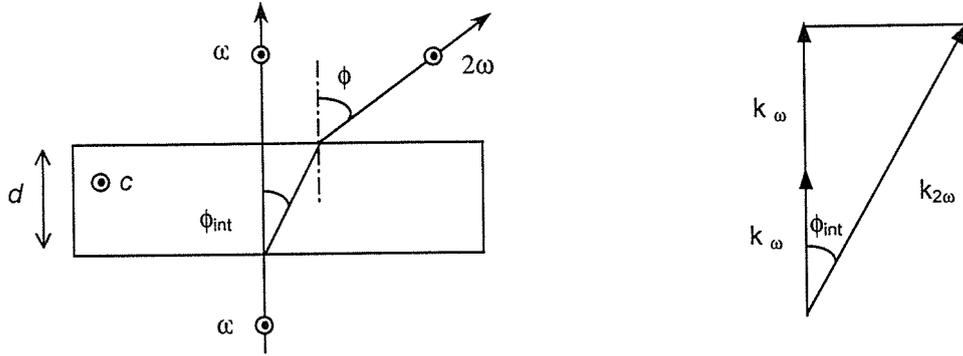


Fig. III-1-8. Quasi-accord de phase par projection.

Pour une seconde harmonique générée dans une direction quelconque ϕ_{int} , le désaccord de phase suivant la direction de propagation du fondamental s'écrit :

$$\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} \cos \phi_{\text{int}} = \frac{4\pi}{\lambda_{\omega}} [n_e(\omega) - n_e(2\omega) \cos \phi_{\text{int}}].$$

Alors la seconde harmonique générée dans le cristal est proportionnelle au facteur $\eta(\phi_{\text{int}})$:

$$\eta(\phi_{\text{int}}) = \frac{\sin^2 [\Delta k(\phi_{\text{int}})d/2]}{[\Delta k(\phi_{\text{int}})d/2]^2}.$$

L'intensité de la seconde harmonique transmise à l'extérieure de la fibre peut être trouvée en multipliant celle générée à l'intérieure par le facteur de transmission selon la formule de Fresnel :

$$T_{\perp} = \left[\frac{2 \cos \phi_{\text{int}} \sin \phi}{\sin(\phi_{\text{int}} + \phi)} \right]^2 \frac{\cos \phi}{\cos \phi_{\text{int}}} \frac{1}{n_e(2\omega)}.$$

Pour comparer à la distribution angulaire expérimentale, on trace l'intensité relative de la seconde harmonique transmise en fonction de l'angle de diffusion ϕ , qui est relié à ϕ_{int} par la loi de la réfraction :

$$n_e(2\omega) \sin \phi_{\text{int}} = \sin \phi.$$

La courbe théorique est tracée sur la figure III-1-7 (b). On voit que cette courbe théorique représente relativement bien l'enveloppe du signal expérimental et qu'un maximum apparaît autour de $\phi = 45^\circ$ sur la courbe théorique comme pour le signal expérimental, ce qui correspond à l'angle de quasi-accord de phase $\phi_{\text{int}0}$.

La remontée du signal expérimental au-delà du 90° est à la réflexion de la seconde harmonique générée dans la fibre. Cette réflexion explique aussi les franges sur le signal expérimental. En effet la seconde harmonique générée dans la fibre subit des réflexions multiples. La fibre se comporte comme un Fabry-Perot dont la transmission doit être modulée en fonction de l'angle selon la fonction d'Airy :

$$A(\Phi) = \frac{1}{1 + M \sin^2(\Phi/2)},$$

ou Φ est le déphasage introduit par le Fabry-Perot:

$$\Phi = \frac{2\pi}{\lambda_{\omega}} 2d n_e(2\omega) \cos \phi_{\text{int}},$$

et M est la finesse :

$$M \equiv \frac{4R}{(1-R)^2}, \text{ avec } R \text{ le coefficient de réflexion : } R = 1-T.$$

Lorsque l'enveloppe théorique de la seconde harmonique transmise est multipliée par la fonction d'Airy, on obtient la courbe montrée sur la figure III-1-9. Deux facteurs ont dû être ajustés pour que l'allure du signal expérimental soit mieux représentée. Premièrement l'épaisseur de la lame est ajustée à 83 μm , l'allure de la courbe dépend sensiblement de ce paramètre (1 μm près). Deuxièmement, la surface courbée de la fibre conduit à une réflectivité plus importante qu'une surface plane. La réflectivité dépend aussi de la taille et divergence du faisceau dans la fibre. Sans vouloir faire un calcul exact, on effectue une correction extrêmement simplifiée de la réflectivité calculée à partir de la formule de Fresnel pour une lame parallèle. Cette correction consiste à ajouter une constante (0.3) à la réflectivité de la lame.

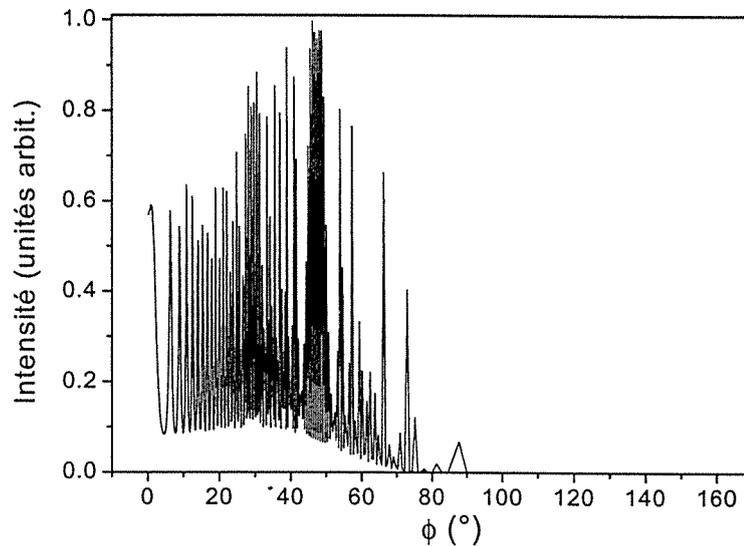


Fig. III-1-9. Intensité calculée de la seconde harmonique à transmise à l'extérieur de la fibre.

La courbe théorique donne l'allure du signal expérimental, sans avoir la prétention de le reproduire en détail. Néanmoins, on retrouve le pic à $\phi = 0^\circ$ et le maximum au tour de 45° .

ϵ . Couplage dans la direction orthogonale de la seconde harmonique dans la fibre

Cette étude de la distribution angulaire dans le plan contenant la fibre suggère un résultat important : la seconde harmonique peut être générée dans la fibre avec un angle ϕ_{int} plus grand que l'angle de réflexion totale $\phi_{\text{int}}^T = \arcsin\left(\frac{1}{n_e(2\omega)}\right) = 25,7^\circ$. Cette partie de seconde

harmonique est guidée par la fibre, et se propage dans une direction perpendiculaire au fondamental (Fig. III-1-10). C'est un mode de couplage inhabituel où le coupleur change à la fois la longueur d'onde et la direction de propagation (orthogonalement) du faisceau incident.

Pour estimer la fraction de la seconde harmonique guidée dans la fibre, on trace sa distribution angulaire dans la fibre avec l'angle de réflexion totale (Fig. III-1-11). Le rapport des aires sous la courbe donne 86,4% de l'intensité transmise, et 13,6% d'intensité de la seconde harmonique générée dans la fibre est guidée par celle-ci. Remarquons que ce rapport dépend du désaccord dans la configuration colinéaire. Et en principe, il est autant plus grand que le désaccord colinéaire est grand.

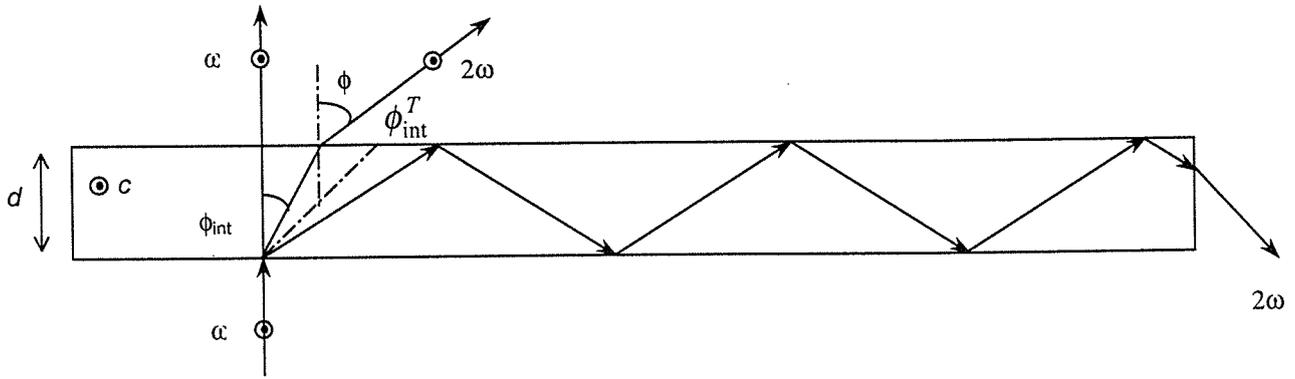
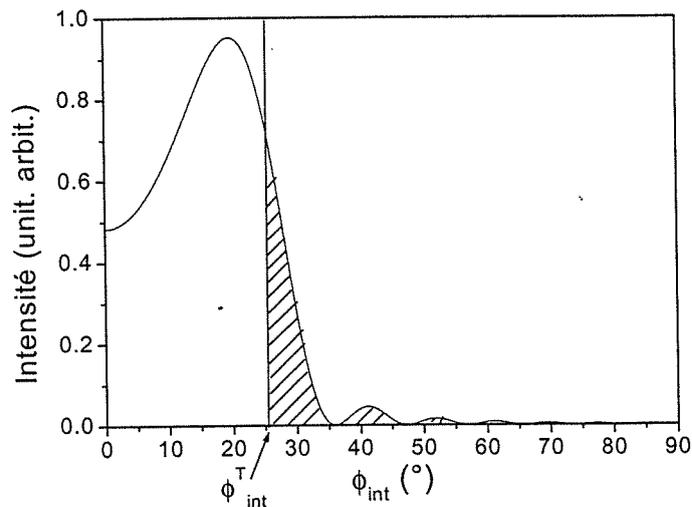


Fig. III-1-10. Guidage de la seconde harmonique par la fibre.

Fig. III-1-11. Distribution de la seconde harmonique à l'intérieur de la fibre et l'angle de réflexion totale ϕ_{int}^T . La partie hachée de l'aire sous la courbe représente la l'intensité guidée par la fibre.

ϕ . Distribution angulaire pour une fibre de plus large diamètre

Dans une fibre aux diamètres plus larges, le comportement de diffusion est différent par rapport à celui observé dans une fibre fine. En collaboration avec l'équipe du Professeur Richard K.Chang à Yale University nous avons étudié une fibre de niobate de lithium dont les diamètres sont 232 μm et 328 μm .

Avec cette fibre dans une configuration d'excitation similaire (mais longueur d'onde à 1120 nm), on observe les émissions de seconde harmoniques relativement directionnelles. Dans le plan perpendiculaire à la fibre, la seconde harmonique est diffusée dans quelques directions privilégiées. Ces directions correspondent en fait aux sortie de faisceau par la réfraction sur la surface de la fibre. La figure III-1-12 montre la distribution angulaire dans le plan perpendiculaire. Un traçage de rayon permet d'identifier les sorties successives des rayons Fig. III-1-12 (b).

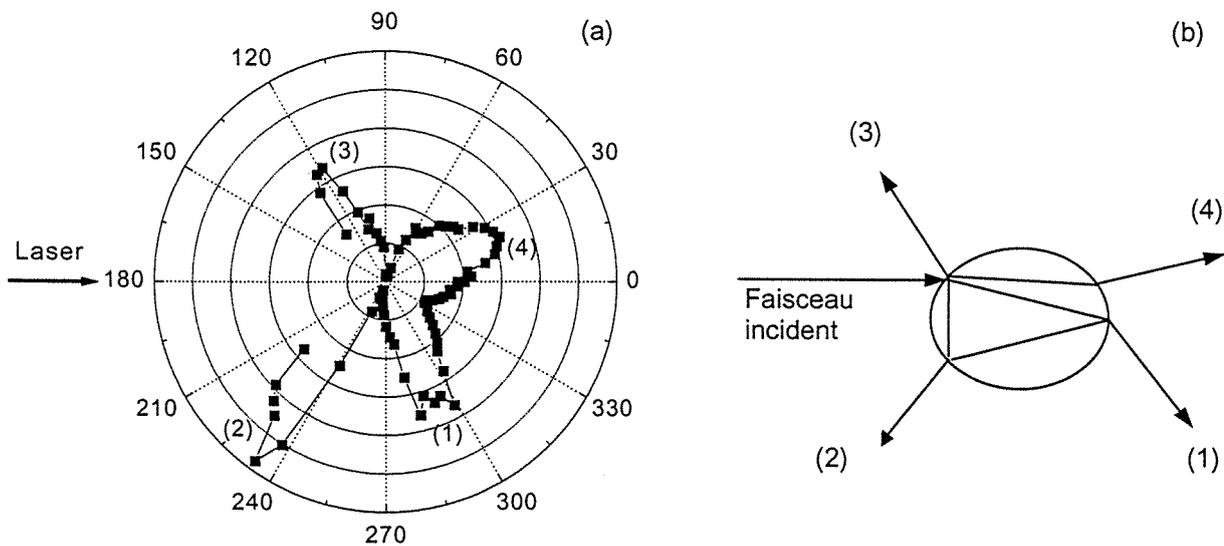


Fig. III-1-12. (a) Distribution angulaire autour d'une fibre aux diamètres 232 μm et 328 μm ; (b) Illustrations des rayons de sortie successifs.

γ . Plage d'accordabilité

L'avantage d'un doublage sans accord de phase colinéaire est que son efficacité doit être peu sensible à la longueur d'onde du fondamental, ce qui conduit à un doubleur à bande passante extrêmement large. Nous avons mesuré l'efficacité de doublage en fonction de la longueur d'onde du fondamental dans la bande de 760 nm à 850 nm et dans celle de 1080 nm à 1260 nm. Pour la première bande, la fibre aux diamètres 63 μm et 80 μm est excitée par un oscillateur femtoseconde à Ti:Saphir (80 fs, 200 mW, 93 MHz, 30 μm spot, intensité $\sim 3,8 \cdot 10^9 \text{ W/cm}^2$); et pour la deuxième bande la fibre aux diamètres 232 μm et 328 μm est excitée par un OPA femtoseconde (150 fs, 5 mW, 1 kHz, 500 μm spot, intensité $\sim 1,7 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$). Les résultats sont montrés sur les figures III-1-13 et III-1-14 pour les deux bandes, avec une comparaison dans la bande de 760 nm à 850 nm avec un cristal de LBO. On voit que la dépendance en longueur d'onde de l'efficacité pour la fibre est faible en contraste par rapport à un cristal où le changement de longueur d'onde décale la condition d'accord de phase.

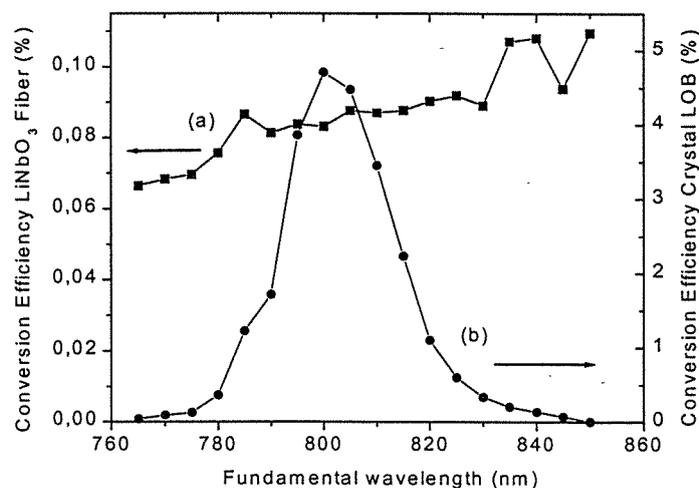
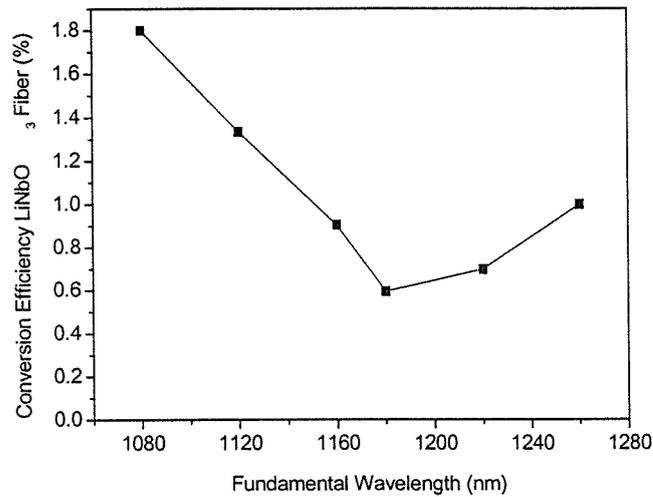
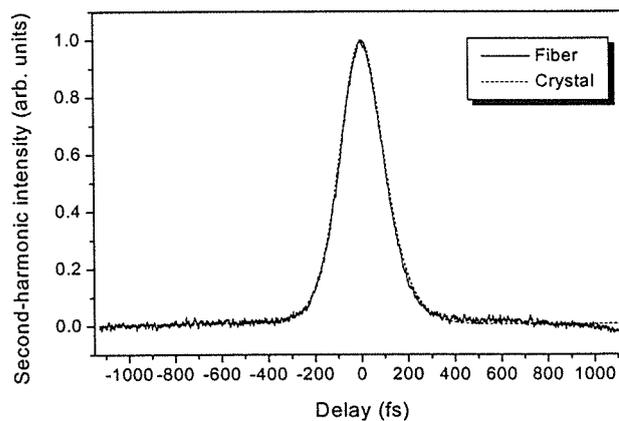


Fig.III-1-13. Efficacité de conversion pour une fibre de LiNbO_3 comparée à celle d'un cristal de LBO.

Fig.III-1-14. Efficacité de conversion pour une fibre de LiNbO₃.

η. Application : micro-doubleur à large bande

Nous avons démontré l'application d'un micro-doubleur avec un autocorrélateur du deuxième ordre, où nous avons remplacé le cristal habituel par la fibre aux diamètres 63 μm et 80 μm. La trace d'autocorrélation est montrée sur la figure III-1-15.

Fig. III-1-15. Trace d'autocorrélation obtenue avec une fibre de LiNbO₃ comparée avec celle obtenue avec un cristal de LOB.

on obtient un bon rapport signal sur bruit comparable au celui obtenu avec le cristal LOB.

III.1.2.d Résumé

Nous résumons les propriétés d'une micro-fibre de LiNbO₃ comme un micro-doubleur par les points suivants :

- Dans la configuration la plus efficace, le fondamental et la seconde harmonique sont polarisés suivant l'axe optique (polarisation extraordinaire), bien que l'accord de phase ne soit pas réalisé dans cette configuration ;

- L'efficacité de conversion ($3,7 \times 10^{-4}$) pour la fibre aux diamètres 63 μm et 80 μm est supérieure à celle pour la fibre aux diamètres 230 μm et 292 μm de presque un ordre de grandeur ;
- La figure de diffusion dans le plan contenant la fibre montre un mécanisme de quasi-accord de phase par projection sur l'axe de propagation du fondamental ;
- L'efficacité de conversion est peu sensible à la longueur d'onde ;
- Des applications peuvent être envisagées soit comme un coupleur non linéaire pour une fibre ou bien comme un doubleur à bande passante extrêmement large.

III.1.3. Distribution angulaire de la fluorescence induite par absorption multi-photonique des molécules dans une micro-gouttelette

III.1.3.a La rétro-diffusion de la fluorescence privilégiée et le principe de réciprocité

La fluorescence émise par un ensemble de molécules en rotation libre est isotrope. Mais lorsque ces molécules se trouvent dans une microcavité, une microsphère diélectrique typiquement, l'émission peut devenir non isotrope. Cette anisotropie est due au fait que la microsphère concentre la lumière excitatrice incidente dans des zones qui ont une dimension petite devant celle de la microsphère.²²⁻²⁴ La zone la plus importante se trouve sur le diamètre principal (définie par l'axe de propagation du faisceau incident), mais décalée du centre de la sphère vers la face cachée de celle-ci. Ce point chaud dans la sphère est, du point de vue d'Optique géométrique, le foyer par réflexion sur la seconde dioptré sphérique de la sphère, le foyer par transmission se trouve derrière ce dioptré à l'extérieure de la microsphère.

Si la concentration des molécules fluorescentes est homogène dans la microsphère, la distribution des émetteurs y est non homogène, conséquence de l'inhomogénéité de la lumière excitatrice, $I(\mathbf{r})$. Cette inhomogénéité devient encore plus importante pour la fluorescence induite par une absorption multi-photonique, car la probabilité de fluorescence est proportionnelle à $I^n(\mathbf{r})$, où n est le nombre de photons concernés dans le processus. Plus précisément pour une microsphère, les émetteurs de fluorescence sont concentrés dans un volume autour du point chaud discuté précédemment. Les principales caractéristiques de cette zone d'émission sont premièrement qu'elle se trouve sur le diamètre principal mais décalée du centre vers la face cachée de la microsphère, et deuxièmement que son volume diminue lorsque le nombre de photons, n , impliqués dans le processus augmente.

Le principe de réciprocité^{25, 26} peut être appliqué dans cette situation pour prédire la distribution de la fluorescence émise autour de la microsphère. Les implications de ce principe sont les suivantes : Si une source se trouvant à r_a loin de la microsphère génère à l'intérieur de celle-ci une intensité à r_b qui est significativement plus intense que les intensités distribuées dans le volume restant de la microsphère, alors la source secondaire à r_b émet préférentiellement vers r_a , c'est à dire vers la direction de rétro-diffusion. La concentration de la lumière incidente sur la source secondaire à r_b est essentielle, si celle-ci est distribuée dans un volume plus grand, la lumière re-émise aura la tendance de se répartir dans d'autres directions que celle de la source primaire à r_a .

Considérons une expérience où une micro-gouttelette contenant des molécules fluorescentes est éclairée par un faisceau parallèle d'excitateur. Selon la propriété d'une microsphère et le principe de réciprocité, on peut donc s'attendre à observer une émission de fluorescence anisotrope, et préférentiellement vers la direction de rétro-diffusion, si la

direction de propagation du faisceau incident est défini comme la direction de diffusion vers l'avant. De plus l'anisotropie ou l'augmentation de la rétro-diffusion est autant plus importante que le nombre de photons, n , impliqués dans le processus soit élevé.

Le principe de réciprocité est illustré pour cette expérience par un calcul de Steven C. Hill de Army Research Laboratory aux Etats-Unis avec qui notre équipe collabore. La figure III-1-16 présente les résultats du calcul de Steven Hill. En (a), la probabilité pour qu'un photon émis à un point r à l'intérieur de la microsphère soit détecté par un détecteur placé à la direction de la rétro-diffusion est présentée dans le plan équatorial. La distribution de l'intensité de l'onde incidente dans la microsphère, $I(r)$ est présentée en (b) et le cube de cette intensité, $I^3(r)$, en (c). Remarquons que $I(r)$ est proportionnelle à l'intensité de fluorescence excitée par une absorption à un photon, et $I^3(r)$ à celle excitée par une absorption à trois photons.

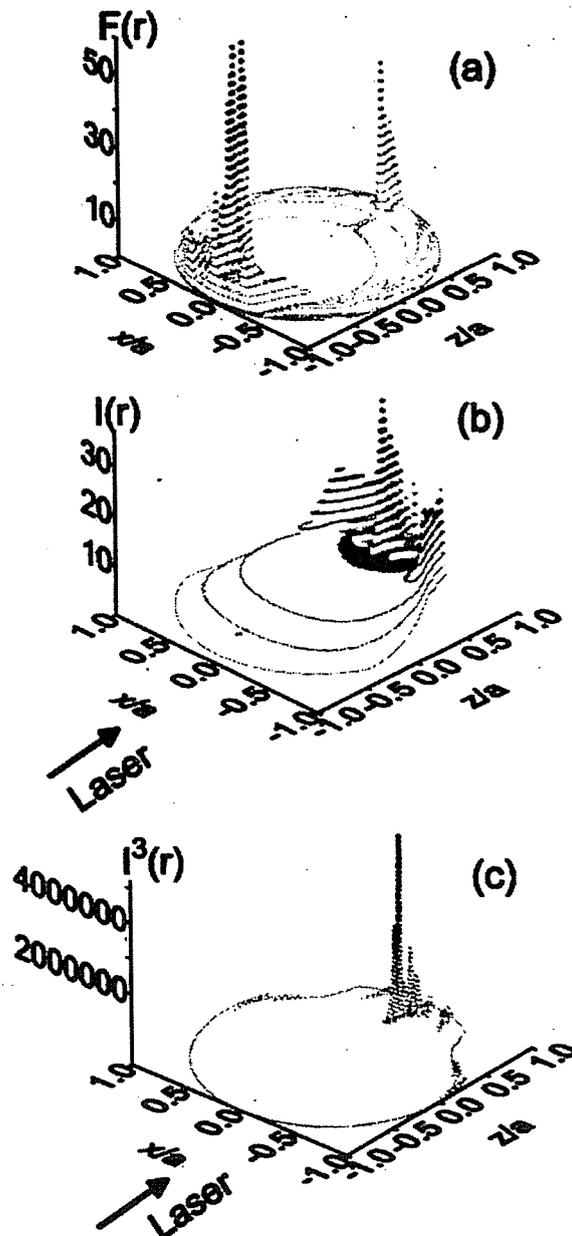


Fig. III-1-16. Les calculs théoriques de Steven Hill. (a) Probabilité pour qu'un photon émis à un point r à l'intérieur de la sphère soit détecté par un détecteur placé à la direction de la rétro-diffusion ; (b) La distribution de l'intensité de l'onde incidente dans la microsphère $I(r)$; et (c) Le cube de cette intensité $I^3(r)$.

On voit ici clairement que les fluorescences sont émises dans la zone où la probabilité de rétro-émission est maximale, et que le recouvrement entre la probabilité d'émission et la probabilité de rétro-émission est nettement meilleure pour la fluorescence excitée par l'absorption à trois photons que pour celle à un photon. Ces calculs montrent que l'intensité de fluorescence est plus grande en rétro-diffusion et l'anisotropie augmente avec le nombre de photons impliqués dans le processus.

III.1.3.b Simulation d'Optique géométrique par le traçage de rayons

Pour avoir une vision plus directe du processus, nous avons réalisé une simulation par le traçage des rayons.²⁷ Le principe de cette simulation est la conservation de flux d'un pinceau de rayons lumineux dans une succession de transformations d'Optique géométrique (réflexion, réfraction). Soit un pinceau de rayons émis d'une source ponctuelle dans un angle solide $d\Omega_0 = \sin\theta_0 d\theta_0 d\phi_0$, après une série de transformation, l'angle solide initial est transformé à l'angle solide final $d\Omega = \sin\theta d\theta d\phi$. Alors l'intensité finale de ce pinceau est reliée à son intensité initiale par $i = i_0 \frac{\sin\theta_0 d\theta_0 d\phi_0}{\sin\theta d\theta d\phi}$. Ici on suppose qu'aucun pinceau

secondaire n'est généré par les transformations, mais ce principe peut être facilement généralisé à des cas où des pinceaux secondaires sont engendrés.

Dans la simulation on fixe une source ponctuelle sur le diamètre principal mais décalée par rapport au centre vers la face cachée de la sphère. On échantillonne les pinceaux de lumière issus de cette source et on calcule l'évolution de chaque pinceau (trajectoire et angle solide) jusqu'au moment où celui-ci émerge de la sphère. On trouve ainsi la distribution de l'intensité lumineuse autour de la sphère.

La figure III-1-17 montre dans le plan équatorial, un tracé des rayons émis par une source ponctuelle dans une sphère diélectrique. La position de la source est marquée par la croix et la surface de la sphère par le cercle. Les échelles sont en μm . Seuls les rayons émergeant la sphère à la première ou à la deuxième transmission sont tracés. Selon les discussions précédentes, cette source ponctuelle est engendrée par un faisceau incident parallèle se propageant de gauche à droite. On voit ici clairement l'effet de la concentration de rayons vers l'arrière. En Optique géométrique, c'est un effet de projecteur qui concentre les rayons issus d'un émetteur décalé par rapport au centre. Une distribution de fluorescence calculée est montrée sur la figure III-1-18.

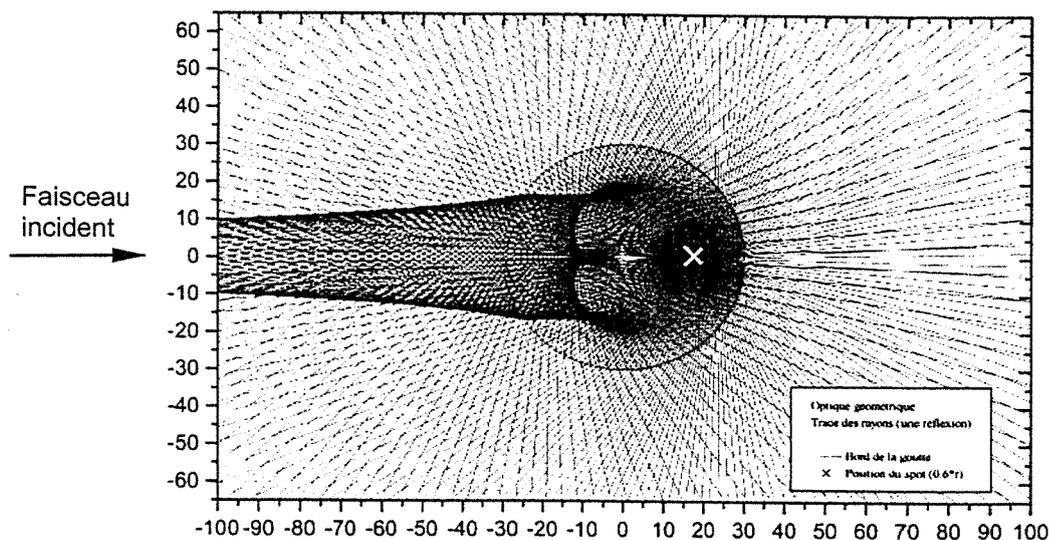


Fig. III-1-17. Tracé des rayons lumineux émergeants d'une sphère diélectrique à la première ou à la deuxième transmission.

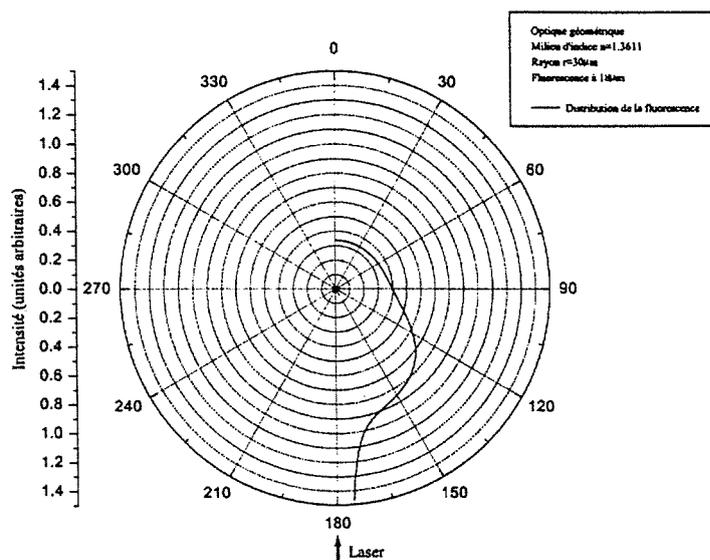


Fig. III-1-18. Distribution angulaire de fluorescence.

III.1.3.c Montage expérimental

Les distributions angulaires de la fluorescence d'une gouttelette dopée ont été mesurées à Lyon et à Yale University pendant le séjour de Jean-Pierre Wolf dans l'équipe du Professeur Richard Chang. A Lyon, nous avons mesuré les fluorescences excitées par l'absorption d'un et de deux photons, à Yale nos collègues ont mesuré celle excitée par trois photons.

Le montage au LASIM est similaire à celui utilisé dans nos expériences de fibre de LiNbO_3 . Seulement à la place de la fibre, les impulsions femtoseconde est focalisées sur un jet de gouttelettes d'éthanol (indice de réfraction 1,3611). Des gouttelettes de diamètre $70 \pm 10 \mu\text{m}$ sont produites par une buse piézo-électrique. La production des gouttelettes peut être synchronisée sur les impulsions laser.

Du colorant de Coumarin 510 est dilué dans l'éthanol avec une concentration typiquement d'un gramme par litre (entre 1 et 5 gr/l). Le pic d'absorption du Coumarin 510 se trouve à 425 nm, idéal pour une absorption à deux photons excitée par des impulsions à 850 nm délivrées par notre oscillateur à blocage de modes basé sur un cristal de Cr:LiSAF. L'utilisation des impulsions femtosecondes (150 fs) permet d'atteindre une intensité suffisamment élevée pour l'absorption à deux photons, sans déposer trop d'énergie pour éviter des processus en compétition, par exemple la diffusion de Brillouin stimulée. Typiquement une intensité de $2 \text{ GW}/\text{cm}^2$ est focalisée sur des gouttes.

Pour l'absorption à un photon, le faisceau issu de l'oscillateur Cr:LiSAF est doublé dans un cristal de LBO. On obtient une intensité de $6 \text{ kW}/\text{cm}^2$ focalisée sur des gouttes.

Pour l'absorption à trois photons à Yale University, un OPA femtoseconde pompé par une chaîne d'amplification à Ti:Saphir produit des impulsions à 1200 nm. La durée d'impulsion est de 100 fs et le taux de répétition 1 kHz. L'intensité focalisée sur une gouttelette est de $100 \text{ GW}/\text{cm}^2$.

L'émission de la fluorescence est centrée à 510 nm. Elle est détectée par un photomultiplicateur (PM) fixé au bout du bras d'un goniomètre piloté par un moteur pas à pas. Les longueurs d'onde d'excitation sont bloquées par des filtres montés devant le PM.

Le système à goniomètre nous permet d'analyser entre $\theta = 0^\circ$ et 170° (la direction de propagation du faisceau incident est définie comme $\theta = 0^\circ$, voir Fig.III-1-2). Pour la zone angulaire $\theta = 180 \pm 10^\circ$, un miroir dichroïque est placé à 45° devant la goutte. Ce miroir

laissant passer le faisceau incident, dévie la fluorescence rétro-diffusée perpendiculairement vers le détecteur.

III.1.3.d Résultats expérimentaux et discussions

Les résultats sont présentés sur la figure III-1-19 pour l'absorption à un photon (a), à deux photons (b), et à trois photons (c). Les points expérimentaux sont présentés dans le demi-cercle inférieur en carrés noirs, et les points calculés théoriquement dans le demi-cercle supérieur en cercles vides.

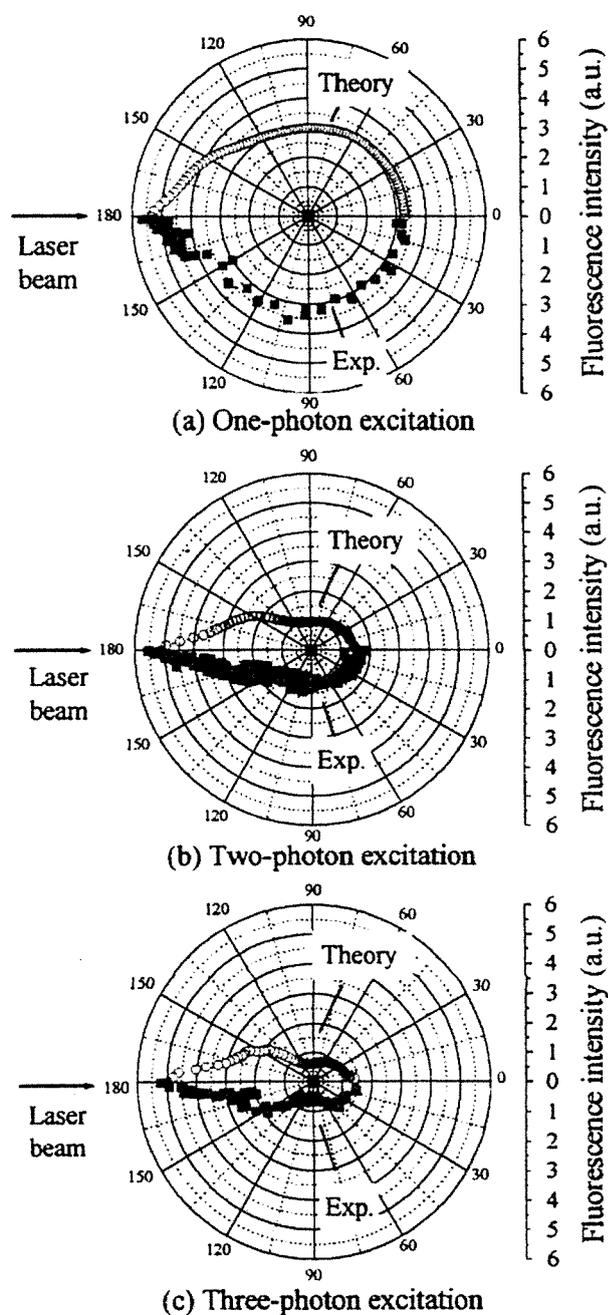


Fig. III-1-19. Distributions angulaires de fluorescence expérimentales et théoriques induite par l'absorption d'un (a), deux (b) et trois (c) photons. Les courbes théorique et expérimentale sont normalisées à 90° .

On voit ici un excellent accord entre les courbes théoriques et les courbes expérimentales. L'anisotropie favorisant la rétro-diffusion est clairement démontrée. On voit aussi l'augmentation du rapport $I(180^\circ)/I(90^\circ)$ avec le nombre de photons absorbés. Ce rapport donne le taux d'augmentation de la rétro-diffusion qu'on peut mesurer à 1.8, 5, et 9 pour la fluorescence induite par l'absorption d'un, deux, et trois photons respectivement.

III.1.3.e Résumé

En résumé, la fluorescence des molécules confinées dans une microcavité est anisotrope. Les origines de cette anisotropie sont la propriété d'une microsphère et le principe de réciprocité. L'anisotropie favorise la rétro-diffusion avec un rapport $I(180^\circ)/I(90^\circ)$ qui augmente avec le nombre de photons absorbés dans un processus de fluorescence.

L'application de ce phénomène pourrait être la détection lidar des polluants dilués dans des aérosols liquides, la microscopie à deux (ou multiple) photons, ou encore la détection d'un très faible signal émis par une molécule unique placée dans une microcavité diélectrique.

III.1.4. Conclusion

En conclusion, nous avons pendant la période entre 1998 et 1999, réalisé un certain nombre d'expériences sur les processus optiques dans une microcavité diélectrique.

Ces expériences n'auraient pas été possibles sans les collaborations avec l'équipe du Professeur Georges Boulon et celle du Professeur Richard Chang. La première équipe nous a fourni des micro-fibres de LiNbO_3 de bonne qualité optique. Et la deuxième équipe, spécialiste de la physique des microcavités optiques, nous donne un soutien théorique indispensable.

Nos expériences montre clairement l'avantage des impulsions femtosecondes pour l'excitation des microcavités. Ces impulsions atteignent une puissance crête élevée sans déposer trop d'énergie sur l'échantillon. La courte durée conduit aussi à une discrimination entre les processus à des temps de réaction différents. En plus, la technique de pompe-sonde doit permettre l'accès à la dynamique des processus.

Finalement l'oscillateur Cr:LiSAF développé au laboratoire a fait ses preuves en assurant l'expérience à un et deux photons.

Références :

1. Pour une revue de ce domaine, voir par exemple « Optical Processes in Microcavities », Richard K. Chang and Anthony J. Campillo, eds., World Scientific, Singapore (1996).
2. A. Ashkin and J.M. Dziedzic, « Observation of resonances in the radiation pressure on dielectric spheres », *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1351, (1977).
3. R.E. Benner P.W. Barber, J.F. Owen, and R.K. Chang, « Observation of structure resonances in the fluorescence spectra from microspheres », *Phys. Rev. Lett.* **44**, 475, (1980).
4. R.K. Chang, « Micro-size droplets as optical cavities : lasing and other nonlinear optical effects », in *Advance in Laser Science II*, M. Lapp, W.C. Stwalley, and G.A. Kenney-Wallace, eds. (American Institute of Physics, New York) pp. 509-515 (1987).
5. C.F. Bohren and D.R. Huffman, « Absorption and Scattering of Light by Small Particles », Wiley, New York (1987).
6. J.F. Owen, P.W. Barber, P.B. Dorain, and R.K. Chang, « Enhancement of fluorescence induced by microstructure resonances of a dielectric fiber », *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1075, (1981).
7. H.M. Tzeng, K.F. Wall, M.B. Long, and R.K. Chang, « Laser emission from individual droplets at wavelengths corresponding to morphology-dependent resonances », *Opt. Lett.* **9**, 499 (1984).
8. Ali Sperpengüzel, J. Christian Swindal, Richard K. Chang, and William P. Acker, « Two-dimensional imaging of sprays with fluorescence, lasing, and stimulated Raman scattering », *Appl. Opt.* **31**, 3543 (1992).
9. V. Lefèvre-Seguin, J.C. Knight, V. Sandoghdar, D.S. Weiss, J. Hare, J.M. Raimond, and S. Hroche, in *Optical Processes in Microcavities*, R.K. Chang and A.J. Campillo, eds. (World Scientific, Singapore), pp. 101-133 (1996).
10. J.B. Sown, S.X. Qian, and R.K. Chang, « Stimulated Raman scattering from individual water and ethanol droplet at morphology-dependent resonances », *Opt. Lett.* **10**, 37, (1985).
11. Rudolf Thurn and Wolfgang Kiefer, « Structural resonances observed in the Raman spectra of optically levitated liquid droplets », *Appl. Opt.* **24**, 1515 (1985).
12. R.G. Pinnick, A. Biswas, R.L. Armstrong, H. Latifi, E. Creegan, and V. Srivastava, G. Fernandez, « Stimulated Raman scattering in micrometer-sized droplets : measurements of angular scattering characteristics », *Opt. Lett.* **13**, 1099, (1988).
13. H.B. Lin, A.L. Huston, J.D. Eversol, and A.J. Campillo, « Double-resonance stimulated Raman scattering in micrometer-sized droplets », *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 2079 (1990).
14. Gang Chen, William P. Acker, and Richard K. Chang, Steven C. Hill, « Fine structures in the angular distribution of stimulated Raman scattering from single droplets », *Opt. Lett.* **16**, 117, (1991).
15. Steven C. Hill, David H. Leach and Richard K. Chang, « Third-order sum-frequency generation in droplets : model with numerical results for third-harmonic generation », *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 16 (1993).
16. David H. Leach and Richard K. Chang, William P. Acker, Steven C. Hill, « Third-order sum-frequency generation in droplets : experimental results », *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 34 (1993).
17. J. Kasparian, B. Krämer, J.P. Dewitz, S. Vajda, P. Rairoux, B. Vezin, V. Boutou, T. Leisner, W. Hübner, J.P. Wolf, L. Wöste, and K.H. Bennemann, « Angular dependences of third harmonic generation from microdroplets », *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2952, (1997).
18. CASIX Catalog 2000, Fujian CASIX Laser Inc.

19. M. Houé and P.D. Townsend, « Characterization in LiNbO₃ for SHG », *J. Phys. D : Appl. Phys.* **28**, 1747 (1995).
20. G. Foulon, M. Ferriol, A. Brenier, M.T. Cohen-Adad and G. Boulon, *Chem. Phys. Lett.* **245**, 555 (1995).
21. Rick Trebino, « Second-harmonic-generation rings and refractive-index measurement in uniaxial crystal », *Appl. Opt.* **20**, 2090 (1981).
22. J.A. Lock and E.A. Hovenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **8**, 1541 (1991).
23. J.P. Barton, *Appl. Opt.* **34**, 5542 (1995).
24. P.W. Barber and S.C. Hill, *Light scattering by particles : Computational methods* (World Scientific, Singapore, 1990), pp. 104, 233.
25. R.F. Harrington, *Time-harmonic Electromagnetic Fields* (McGraw-Hill, New York, 1961), pp. 116-125.
26. S.C. Hill G. Videen, and J.D. Pendleton, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2522 (1997).
27. Stéphane Ramstein « Etude de la fluorescence induite par absorption à deux photons dans des microparticules sphériques avec des impulsions femtosecondes », Stage du DEA Particules, Noyaux, Atomes et Photons, Lyon 1 – ENS Lyon (1999).

Nos publications sur ce travail :

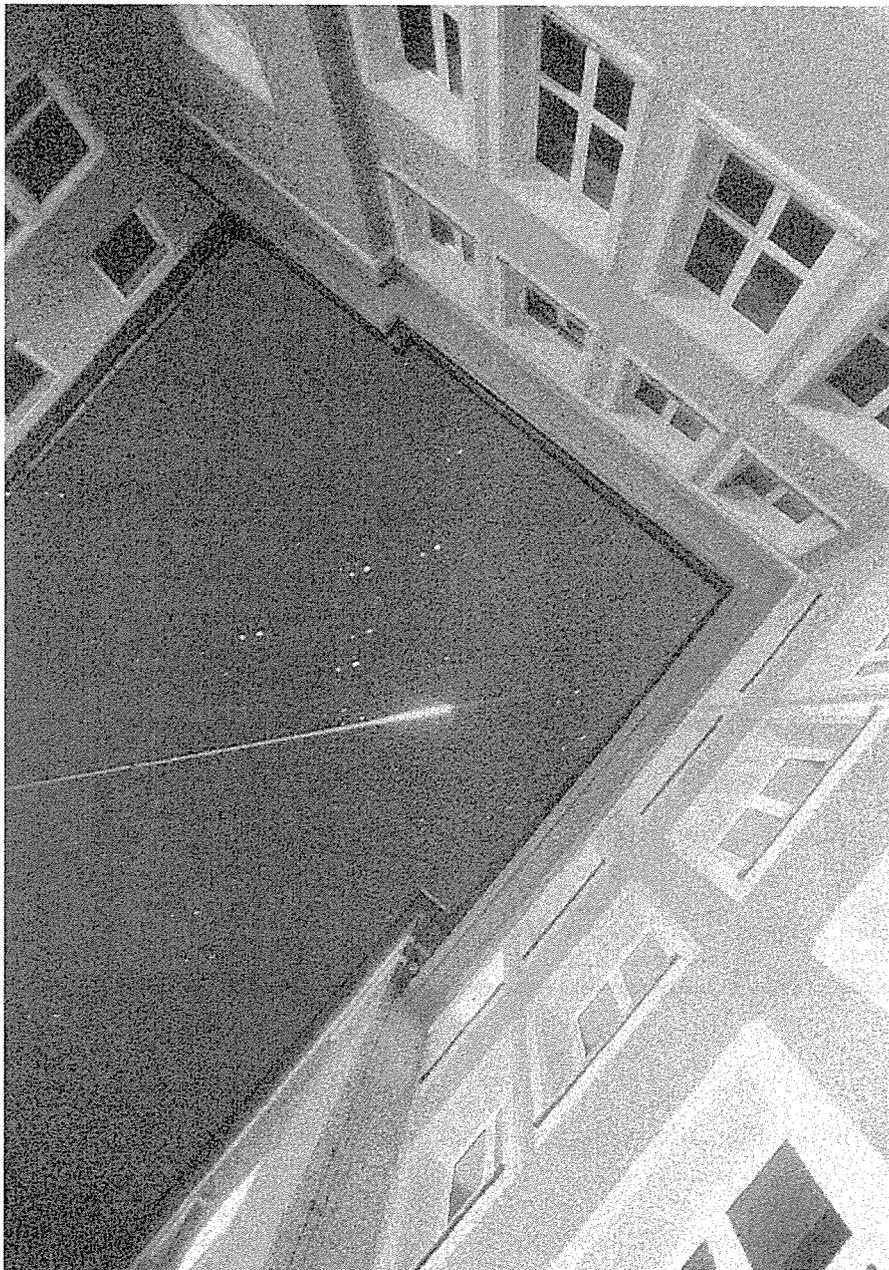
1. J. Yu, K. Giulietti, F. Surgen, A. Ross, J.P. Wolf, M. Ferriol, G. Foulon, C. Goutaudier, M.T. Cohen-Adad, and G. Boulon, « Second harmonic generation in a micro-radius LiNbO₃ cylinder with quasi-elliptical cross section », *Opt. Lett.* **24**, 394 (1999).
2. J. Yu, K. Giulietti, F. Sourgen, and J.P. Wolf, F. Carrillo Romo, C. Goutaudier, M.T. Cohen-Adad, G. Boulon, « Second harmonic generation in a LiNbO₃ crystal fiber », *J. Phys. IV France* **10**, Pr8-113 (2000).
3. Steven C. Hill, Véronique Boutou, Jin Yu, Stephane Ramstein, Jean-Pierre Wolf, Yong-le Pan, Stephan Holler, and Richard K. Chang, « Enhanced backward-directed multi-photon-excited fluorescence from microcavities », *Phys. Rev. Lett.* **85**, 54 (2000).

Rapports de stage soutenus sur ce travail dans notre équipe :

1. Olivier Bonneton, «Diffusion linéaire d'impulsions femtosecondes par une microcavité diélectrique», Stage du DEA Physique des Solides, Lyon 1 – ENS Lyon, (1997).
2. Karen Giulietti, «Diffusion nonlinéaire d'impulsions femtoseconde par une microcavité diélectrique, génération de la seconde harmonie dans une microcylindre de LiNbO₃ », Stage du DEA Particules, Noyaux, Atomes et Photons, Lyon 1 – ENS Lyon (1998).
3. Frédéric Sourgen, «Génération de la seconde harmonie dans une microcylindre de LiNbO₃, étude des propriétés du microdoubleur», Stage de la première année du Magistère Science de la Matière, Lyon 1 – ENS Lyon, (1998).
4. Stéphane Ramstein « Etude de la fluorescence induite par absorption à deux photons dans des microparticules sphériques avec des impulsions femtosecondes », Stage du DEA Particules, Noyaux, Atomes et Photons, Lyon 1 – ENS Lyon (1999).

Chapitre III.2

Projet Teramobile : Impulsions terawatt appliquées à la détection lidar des polluants atmosphériques



III.2.1 Introduction

III.2.1.a Mise en place du projet

TERAMOBILE est un projet franco-allemand de grande envergure faisant intervenir quatre laboratoires, spécialisés, pour deux d'entre eux (LOA-ENSTA-Ecole Polytechnique, A. Mysyrowicz, et Inst. für Quantenelektronik à l'Univ. de Jena, R. Sauerbrey) dans la génération et la propagation d'impulsions femtosecondes Terawatt, et pour les deux autres (Inst. für Experimentalphysik de l'Univ. de Berlin, L. Wöste, et LASIM de l'Univ. Lyon 1, J.P. Wolf) dans la caractérisation de l'atmosphère par lidar (Light Detection and Ranging).

Le but du projet est de joindre ces deux thématiques en utilisant les effets hautement nonlinéaires (filamentation et génération de lumière blanche) liés à la propagation d'impulsions terawatt pour mieux caractériser l'atmosphère, et en particulier la pollution.

Après un premier accord entre le CNRS et la DFG en mars 1999, la construction du système est lancée en septembre 1999.

La partie principale du dispositif consiste en un système de laser femtoseconde amplifié (Fig. III-2-1). Un amplificateur régénératif suivi par deux étages d'amplification à multiples passages portent l'énergie par impulsion à 400 mJ, ce qui pour une durée de 100 fs, correspond à une puissance crête de 4 terawatt. Ce système sera intégré dans un conteneur de 6 m de long et 2 m de large. Le faisceau de sortie peut être tiré horizontalement ou verticalement. Une station lidar sera construite dans le même conteneur, avec un télescope de réception, un spectromètre, des détecteurs et des électroniques. L'ensemble peut être déplacé par un camion. Le système sera opérationnel vers la fin de l'année 2000.

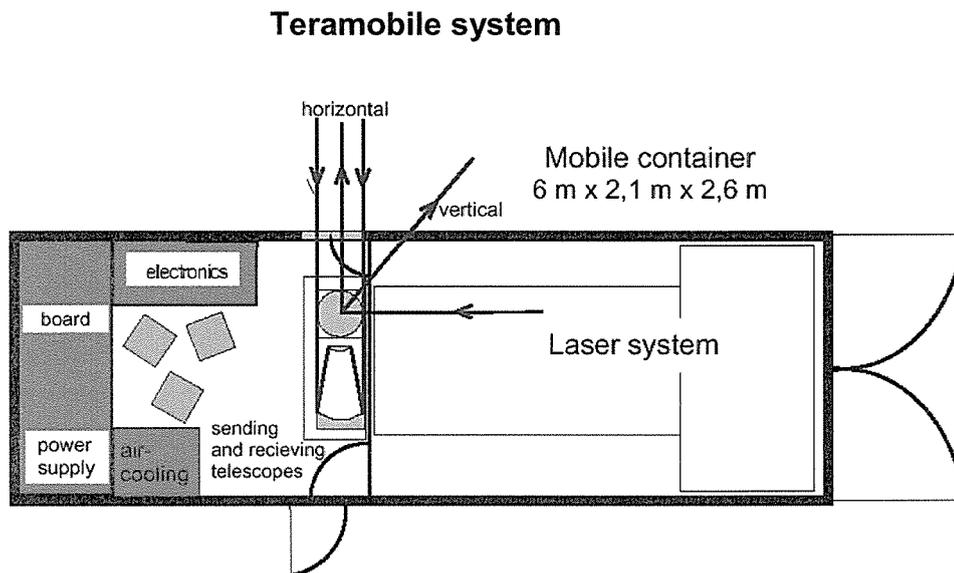


Fig. III-2-1. Plan du conteneur principal du dispositif du Projet Teramobile.

Un laboratoire mobile est aussi en train d'être construit dans une remorque. Il abrite principalement des instruments de mesure et de diagnostic. Ce laboratoire mobile est autonome avec son propre groupe électrogène. Sa fonction sera essentiellement la

diagnostique du faisceau terawatt sur un long trajet horizontal (\sim km), l'absorption à longue distance et la détection lidar (Light Detection and Ranging) en configuration bistatique.

Les tâches de construction sont réparties entre les quatre partenaires. A Lyon, nous nous sommes occupés du laboratoire mobile dans une remorque.

En parallèle avec les constructions des unités du dispositif du projet Teramobile, les expériences d'approche ont été réalisées, pendant cette première année du projet, avec les systèmes laser stationnaires à Lyon, à Palaiseau et à Jena. Ces expériences ont pour l'objectif de répondre aux questions soulevées par l'application des impulsions terawatt à la détection lidar des polluants atmosphériques. Ces expériences concernent la caractérisation de la propagation dans l'atmosphère des impulsions terawatt : la détermination du profil spectral du continuum généré, les paramètres optimisant cette génération, et la distribution angulaire de la lumière blanche générée en particulier le comportement de la rétro-diffusion.

Avec le système Teramobile, les expériences de caractérisation vont être poursuivies sur une échelle plus vaste. Les campagnes de détection lidar vont être organisées. Un grand effort sera employé pour d'une part la maîtrise du système pour des expériences sur le terrain, et d'autre part la détection et l'interprétation des signaux de ce lidar non linéaire d'une nouvelle génération.

Personnellement, je me suis engagé dans ce projet fascinant avec mes collègues teramobilistes. Depuis septembre 1999, je suis accueilli au CNRS en délégation pour le projet Teramobile. Cette année, ma délégation est prolongée d'une année jusqu'à septembre 2001.

III.2.1.b Motivation et contexte scientifique

α . Filamentation et génération du continuum

La propagation des impulsions laser ultracourtes dans l'air devient hautement non linéaire lorsque leur puissance crête dépasse une dizaine de gigawatt. Les études dans ce domaine se sont développées rapidement aussi bien au niveau expérimental que théorique. Elles sont stimulées par la « démocratisation » des sources femtosecondes amplifiées, qui délivrent des impulsions jusqu'à plusieurs centaines de mJ dans une durée typique de 100 fs. Le transport et la focalisation de ces impulsions ont un intérêt essentiel pour toutes les applications autour d'une source ultra-brève et ultra-intense.

Sur le trajet d'un faisceau d'impulsions femtosecondes intenses, l'auto-focalisation due à l'effet Kerr et l'effet du plasma crée par une impulsion conduisent à des filaments de lumière d'un diamètre d'environ 100 μm et se propageant sur plusieurs dizaines de mètres dans l'air.¹ La formation des filaments fournit de longues distances d'interaction aux processus non linéaires de conversion de fréquence, notamment celui de l'automodulation de phase. La génération de continuum est particulièrement efficace dans ces filaments. Le « supercontinuum » généré dans des filaments a été mesuré entre l'UV et le proche infrarouge jusqu'à 0,9 μm .²

β . Utilisation des filaments de lumière blanche pour la détection lidar des polluants atmosphériques

L'utilisation d'impulsions ultrabrèves et de filaments de lumière blanche pour la caractérisation de l'atmosphère est un domaine tout à fait nouveau. L'émergence du sujet provient d'expériences préliminaires réalisées par deux des quatre initiateurs du projet Teramobile (FU Berlin et Univ. de Jena). Lors de ces expériences, la lumière blanche rétro-diffusée a été observée par un télescope jusqu'à 12 km d'altitude en provenance des filaments induits par des impulsions femtosecondes terawatt envoyées dans l'atmosphère (voir la

photographie de la page 135).³⁻⁵ L'émission de ces filaments est caractérisée par un très large spectre étendu de l'UV à l'IR et, pensait-on, par une distribution angulaire anisotrope favorisant la rétro-diffusion.

Ces caractéristiques sont extrêmement intéressantes pour des applications d'analyse optique de l'atmosphère, et notamment pour les applications du type lidar. La technique lidar permet en effet l'analyse tridimensionnelle de la pollution atmosphérique à grande sensibilité (parties par milliard, ppb) et sur plusieurs kilomètres.

Actuellement, les méthodes optiques d'analyse lidar classiques souffrent cependant de limitations, dont les plus sévères sont: (1) l'impossibilité de mesurer plusieurs polluants simultanément, (2) la faible portée de la mesure pour les polluants absorbants dans l'infrarouge (composés organiques volatils), et surtout (3) la très grande difficulté de caractérisation des aérosols. Or, les aérosols jouent un rôle prépondérant dans la physico-chimie de l'atmosphère et dans les impacts sur la santé. Citons, par exemple, leur rôle de vecteur de polluants dans les voies respiratoires (particules émises par les véhicules), leur effet sur le bilan radiatif terrestre et donc dans les changements climatiques globaux, leurs interactions avec la pollution oxydante (acidification, réactions en phase condensée) ou leur rôle déterminant dans la destruction de l'ozone stratosphérique (nuages stratosphériques polaires).

La difficulté de mesurer des aérosols dans l'atmosphère réside dans leur très grande variété en taille (10 nm à plusieurs microns), en composition (suies, spores, sulfates, nitrates, minéraux, microgouttelettes...), et en forme (sphérique, lisse, cristalline, fractale). Or, les méthodes optiques traditionnelles se limitent généralement à l'analyse de la diffusion Mie de ces ensembles de particules, dont l'inversion est par conséquent extrêmement difficile.

Le but du projet Teramobile est d'utiliser des impulsions ultrabrèves pour apporter des solutions à ces limitations. En particulier :

- (1) Le très large spectre émis par les filaments peut être mis à profit pour une analyse de plusieurs gaz simultanément (analyse multi-polluants)
- (2) La rétrodiffusion Rayleigh-Mie aux grandes longueurs d'onde (infrarouge moyen et lointain) est très peu efficace, ce qui limite grandement la portée des Lidars infrarouges classiques. La génération de la radiation "sur place" et l'augmentation de la rétro-diffusion par des effets nonlinéaires peuvent apporter une solution à cette limitation. La mesure de la concentration d'un composant donné ou de plusieurs simultanément, se fait alors par absorption linéaire sur le chemin de retour vers le détecteur de la lumière blanche.
- (3) La radiation rétro-diffusée sur une plage de longueurs d'onde extraordinairement large (visible et infrarouge proche) peut être utilisée pour caractériser les aérosols. Le spectre entier de rétro-diffusion devrait en effet permettre un accès nouveau à la mesure à distance de la distribution de taille des aérosols. On peut aussi utiliser des puissances crêtes moins élevées pour observer des effets nonlinéaires générés dans les aérosols eux-mêmes.^{6,7} Nos expériences récentes ont montré que la fluorescence excitée à 2 ou 3 photons était fortement anisotrope dans des aérosols, et que la plus grande partie de l'émission spontanée était émise vers l'arrière,⁸ ce qui rend la méthode particulièrement avantageuse pour des expériences Lidar.

χ. Questions soulevées par la nouvelle application

La nouvelle application des impulsions ultra-courtes et ultra-intenses soulève cependant de nouvelles questions concernant la propagation nonlinéaire de ces impulsions dans l'atmosphère :

- Quel est le profil spectral du continuum généré par des filaments, en particulier dans l'infrarouge ?
- Quels sont les paramètres optimisant cette génération de continuum ?
- Quelle est la distribution angulaire de la lumière blanche générée ?
- En particulier, est-ce que la rétro-diffusion est privilégiée par des processus nonlinéaires ?
- Quelle est l'évolution du profil spectral le long du filament ?
- Quelle est la longueur des filaments et quels sont les paramètres qui déterminent cette longueur ?
- Quels sont les mécanismes d'initiation et de terminaison des filaments ?
- Quel est le comportement des filaments sur une longue distance de propagation de l'ordre du kilomètre ?

Les réponses à ces questions sont essentielles pour mener à bien l'application du lidar nonlinéaire. Pendant cette première année du projet Teramobile, nous avons réalisé un certain nombre d'expériences qui ont contribué à approfondir nos connaissances sur la propagation nonlinéaire des impulsions ultra-courtes et ultra-intenses. Dans la suite de ce chapitre, après un bref rappel des travaux antérieurs, je présenterai nos résultats et je soulignerai les contributions du projet Teramobile à ce domaine de la propagation des impulsions ultra-courtes et ultra-intenses dans l'atmosphère.

III.2.2 Processus physiques jouant un rôle dans la propagation des impulsions ultra-courtes et ultra-intenses dans l'atmosphère

III.2.2.a Ce que nous apprend un livre de l'Optique Nonlinéaire

α. Réponses nonlinéaires d'un milieu à une excitation optique

Un milieu répond à une excitation optique par une polarisation qu'on écrit sous la forme suivante, dans le cas le plus simple où tous les champs concernés sont scalaires :

$$P(t) = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots \right],$$

où les $\chi^{(i)}$ sont les susceptibilités. Le premier terme est la réponse linéaire et les termes suivants représentent les réponses nonlinéaires de l'ordre de nonlinéarité croissant.

L'interaction matière-rayonnement est donc fondamentalement nonlinéaire, comme résume admirablement Y.R. Shen dans l'introduction de son livre :⁹ *Physics would be dull and life most unfulfilling if all physical phenomena around us were linear. Fortunately, we are living in a nonlinear world. While linearization beautifies physics, nonlinearity provides excitement in physics.*

Dans un milieu centro-symétrique, $\chi^{(2)}$ est identiquement nulle, le premier terme nonlinéaire est alors $\chi^{(3)}$. L'un des effets les plus importants de $\chi^{(3)}$ est l'indice de réfraction nonlinéaire : $n = n_0 + n_2 I$,

où n_2 est définie à partir de $\chi^{(3)}$:

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4\epsilon_0 n_0^2 c}.$$

La valeur typique¹⁰ de n_2 pour un milieu transparent dense comme le saphir est de $4,2 \times 10^{-16}$ cm/W, et celle pour un milieu dilué comme l'air $4,74 \times 10^{-19}$ cm/W, trois ordres de grandeurs plus petite que dans un milieu dense.

β. Auto-focalisation induite par l'effet Kerr

L'auto-focalisation est un phénomène spectaculaire où l'on observe la propagation nonlinéaire d'un faisceau lumineux qui est dépendante d'une manière critique de son profil transverse. En effet la variation transverse de l'indice de réfraction, $\Delta n(x) = n_2 I(x)$, induite par un faisceau à profil transverse gaussien par exemple, joue le rôle d'une lentille convergente (lentille de Kerr) qui conduit la focalisation du faisceau.

L'auto-focalisation a été suggérée très tôt en 1962 par Askar'yan.¹¹ Sa première observation est due à Hercher¹² en 1964. Quand il faisait propager un faisceau laser de quelques mégawatts dans un solide, un long fil d'endommagement de diamètre de quelques μm a été observé. Chiao et al.¹³ ont proposé le modèle d'auto-confinement des impulsions dans des filaments pour expliquer l'observation. Un peu plus tard, le modèle du foyer en mouvement (moving focus) donne une description plus détaillée du processus.^{14, 15}

χ. Automodulation de phase et la génération du continuum

Pour une impulsion le profil temporaire, $I(t)$, induit une variation temporaire de l'indice de réfraction, $\Delta n(t) = n_2 I(t)$. Donc la phase de l'impulsion est modulée en traversant une épaisseur élémentaire δz :

$$\Phi(t) = \omega_0 t - k \delta z = \omega_0 t - \frac{\omega_0}{c} n_0 \delta z - \frac{\omega_0}{c} n_2 I(t) \delta z .$$

Cette modulation de phase conduit à une génération de nouvelles fréquences :

$$\omega(t) = \frac{d\Phi(t)}{dt} = \omega_0 - \frac{n_2 \omega_0}{c} \frac{dI(t)}{dt} \delta z .$$

Pendant le front montant d'une impulsion, $dI(t)/dt$ est positive, des composantes spectrales décalées vers le rouge (composants Stokes) sont générées. Alors des composantes décalées vers le bleu (composants anti-Stokes) sont générées pendant la décroissance de l'impulsion.

Les premières observations de l'élargissement spectral de l'émission du filament formé dans un milieu liquide ont été rapportées dans la deuxième moitié des années soixante.^{16, 17, 18} F. Shimizu a proposé un modèle simple pour interpréter les observations expérimentales.¹⁹ Ce modèle calcule la modulation de phase d'une impulsion piégée dans un filament. Le spectre de sortie du filament est obtenu en prenant le transformé de Fourier du champ de l'impulsion.

III.2.2.b Filamentation dans l'air : observations et modèles

α. Observations expérimentales

L'observation de la filamentation dans l'air est beaucoup plus récente. Il est évident que la faible valeur de l'indice nonlinéaire n_2 dans un milieu gazeux nécessite une puissance crête plus importante. Le seuil de l'auto-focalisation est trois ordres de grandeur plus élevé que dans un milieu solide ou liquide, passant de l'ordre du mégawatt à celui du gigawatt. Seules des impulsions femtosecondes sont capables d'atteindre facilement cette puissance crête. En effet à une durée de 100 fs, une impulsion de 1 mJ correspond déjà à une puissance de crête de 10 GW.

Entre 1995 et 1997 quatre groupes, à University of Michigan,¹ à University of Electro-Communications à Tokyo,² à LOA-ENSTA-Ecole Polytechnique à Palaiseau,²⁰ et à Université Laval,²¹ ont rapporté l'observation de la filamentation dans l'air avec des impulsions incidentes à 800 nm. Les principales caractéristiques de la filamentation dans l'air peut être résumées par les points suivants :

- La longueur des filaments dépasse largement la longueur de Rayleigh et peut atteindre une centaine de mètres ;²¹
- Le diamètre d'un filament est de 80-100 μm sur une distance d'une dizaine de mètre,^{1,20} mais peut devenir plus grand (~ 1 mm) à une centaine de mètres ;²¹
- Une émission conique est observée vers l'avant autour du filament.^{20, 21} Sur un écran placé sur le trajet du faisceau, des anneaux colorés sont observés avec du rouge à l'intérieur et du bleu à l'extérieur. L'angle d'émission pour l'anneau externe (à 550 nm) est de $0,12^\circ$;
- Un supercontinuum est généré dans les filaments et s'étend de l'UV à l'infrarouge ;²
- Un plasma à faible densité est généré dans un filament. Sa densité est déterminée par la mesure de la conductivité du filament. Des valeurs entre 10^{14} et 10^{17} cm^{-3} sont trouvées selon les conditions expérimentales ;²²⁻²⁴
- Le profil temporel d'une impulsion peut évoluer, auto-raccourcissement (self-shortening)²⁵ et auto-séparation (self-splitting)²⁶ ont été observés.

Les filaments excités par des impulsions ultraviolettes (400 nm) ont été étudiés plus récemment.^{27, 28} Une grande différence par rapport à l'excitation à l'infrarouge (800 nm) est l'absence de la génération du supercontinuum. Cette absence est interprétée par le faible seuil d'ionisation en UV. L'intensité contenue dans un filament UV est plus faible, typiquement de 2 ordres de grandeurs inférieure à celle contenue dans un filament à 800 nm ($\sim 10^{13}$ W/cm^2).

β . Le modèle de l'auto-canalisation (Self-channeling)

Le modèle de l'auto-canalisation a été proposé par A. Braun et al.¹ Dans ce modèle, la stabilité du filament est interpréter comme le résultat d'un équilibre entre l'auto-focalisation due à l'effet Kerr et un effet combiné de la diffraction naturelle et la réfraction sur le plasma créé par les impulsions laser. Ainsi les impulsions sont confinées dans un canal avec au centre un cœur de plasma à indice faible, et avec autour de ce cœur une gaine à indice plus élevé dû à l'effet Kerr.

E.T. Nibbering et al.²⁰ ont repris ce modèle pour interpréter l'émission conique comme un mode de fuite du canal. L'émission conique peut être aussi décrit par une émission Cerenkov en provenance du paquet d'onde qui se déplace dans le cœur à indice plus faible, donc avec une vitesse plus élevée.

γ . Le modèle du foyer déplaçant (moving focus)

Un deuxième modèle est proposé par A. Brodeur et al.,²² qui reprend le modèle du foyer en mouvement (moving focus) développé en régime nanoseconde.²⁹⁻³¹ Dans ce modèle, une impulsion est découpée en des tranches à puissance crête, P , différentes. L'auto-focalisation induite par l'effet Kerr produit un foyer à une distance différente pour chaque tranche :

$$z_f = \frac{0,367 k a^2}{\sqrt{[(P/P_{crit})^{1/2} - 0,852]^2 - 0,0219}} ,$$

où $k = 2\pi/\lambda$, a est le waist (rayon à l'intensité $1/e$) du faisceau à $z = 0$, et $P_{crit} = \frac{3,77 \lambda^2}{8\pi n_0 n_2}$.

Ce modèle offre une vision différente du processus de la filamentation : des impulsions ne sont pas vraiment guidées, mais les tranches d'une seule impulsion se focalisent successivement sur une ligne qui s'étend entre le foyer de la tranche la plus puissante et celui de la tranche la moins puissante (foyer de la propagation linéaire). Un filament apparaît en moyenne dans le temps.

δ. Le modèle de réapprovisionnement dynamique (Dynamic spatial replenishment model)

Il y avait pendant quelques années, une polémique entre les partisans des deux modèles présentés précédemment. Bien sûr chaque modèle comporte des insuffisances. Le modèle de l'auto-canalisation est un modèle simple mais fondamentalement statique. Il ne décrit pas la dynamique de la création du plasma ni l'évolution du profil temporel d'une impulsion. D'un autre côté, le modèle du foyer déplaçant n'arrive pas à expliquer la propagation d'un filament au-delà du foyer géométrique.³²

Un effort théorique de synthèse a été fourni par le groupe à University of Arizona, qui propose le modèle de réapprovisionnement dynamique (Dynamic spatial replenishment model).^{33,34} Dans ce modèle, la simulation numérique donne une vision dynamique de la propagation nonlinéaire des impulsions : une impulsion se propage et la partie avant de cette impulsion initialement s'autofocalise par l'effet Kerr pour atteindre une puissance suffisamment élevée dépassant le seuil d'ionisation de l'air. Le plasma créé diffracte la queue de l'impulsion et conduit à l'élargissement de son profil transverse. L'absorption du plasma diminue également la puissance de l'impulsion pour revenir en dessous du seuil d'ionisation. L'effet Kerr domine de nouveau et induit une refocalisation de la queue de l'impulsion, ce qui « réapprovisionne » l'impulsion dans sa propagation. Ce processus peut recommencer et se répéter tant qu'il y a encore suffisamment d'énergie dans l'impulsion. En moyenne dans le temps cette évolution dynamique donne l'illusion d'une propagation à long distance d'une impulsion auto-guidée. Mais en réalité, les paramètres importants du guidage, tailles du faisceau, densité du plasma, profil temporel de l'impulsion ... subissent des oscillations sur une courte distance. Selon les simulations de M. Mlejnek³⁴ cette distance est de l'ordre d'un mètre.

III.2.3 Détermination du profil spectral du supercontinuum

Le profil spectral du supercontinuum émis par des filaments formés dans un gaz rare a été récemment mesuré par l'équipe à University of Electro-Communications à Tokyo.² Leur mesure a montré un spectre ultra-large distribué entre 100 nm et 900 nm. Néanmoins le continuum généré par des filaments formés dans l'atmosphère n'a pas été encore mesuré au début du projet Teramobile.

En plus l'intensité spectrale dans l'infrarouge moyen était encore mal connue. Or pour l'application lidar, les émissions dans l'infrarouge autour de 3,5 μm présentent un intérêt particulier, dû à la présence de nombreuses bandes d'absorption des composants organiques volatiles (COV's). Ces composants sont des sources de pollution atmosphériques importantes liées à au trafic urbain. Leur détection par le lidar classique reste difficile à cause de la difficulté de produire des impulsions laser accordables et suffisamment puissantes dans cette gamme de longueur d'onde. Une des ambitions du projet Teramobile est d'arriver à détecter des COV's dans la bande de 3,5 μm avec le continuum généré par des impulsions terawatt dans l'atmosphère.

Nous avons donc d'abord analysé le contenu spectral du continuum. Nos expériences ont été effectuées avec le système de laser terawatt à Institut für Optik und Quantenelektronik à

Jena en Allemagne et celui au Laboratoire d'Optique Appliquée à Palaiseau. Le premier laser délivre des impulsions d'une durée de 100 fs et d'une énergie de 200 mJ. Le deuxième laser fournit 60 mJ en une durée de 35 fs (cette énergie ne correspond pas à la valeur maximale que puisse délivrer ce système). Donc la puissance crête des deux lasers atteint la valeur de 2 TW.

Dans nos expériences le faisceau laser est focalisé par une lentille d'une distance focale de 10 m. Un miroir en aluminium envoie une partie de la lumière blanche générée vers la fente d'entrée d'un spectromètre (Fig. III-2-2).

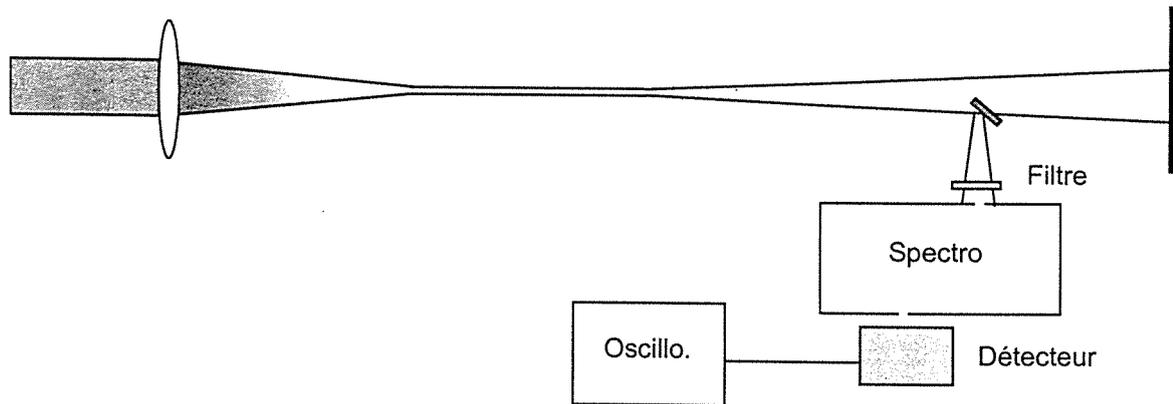


Fig. III-2-2. Montage expérimental pour la détermination du profil spectral du supercontinuum.

Trois détecteurs ont été utilisés pour couvrir toute la plage spectrale entre 400 nm et 4,5 μm : un ICCD en silicium (400 à 850 nm), une photodiode en germanium (0,6 à 1,7 μm), et une photodiode en InSb (1,5 à 5,6 μm).

Le spectre obtenu est montré sur la figure III-2-3.

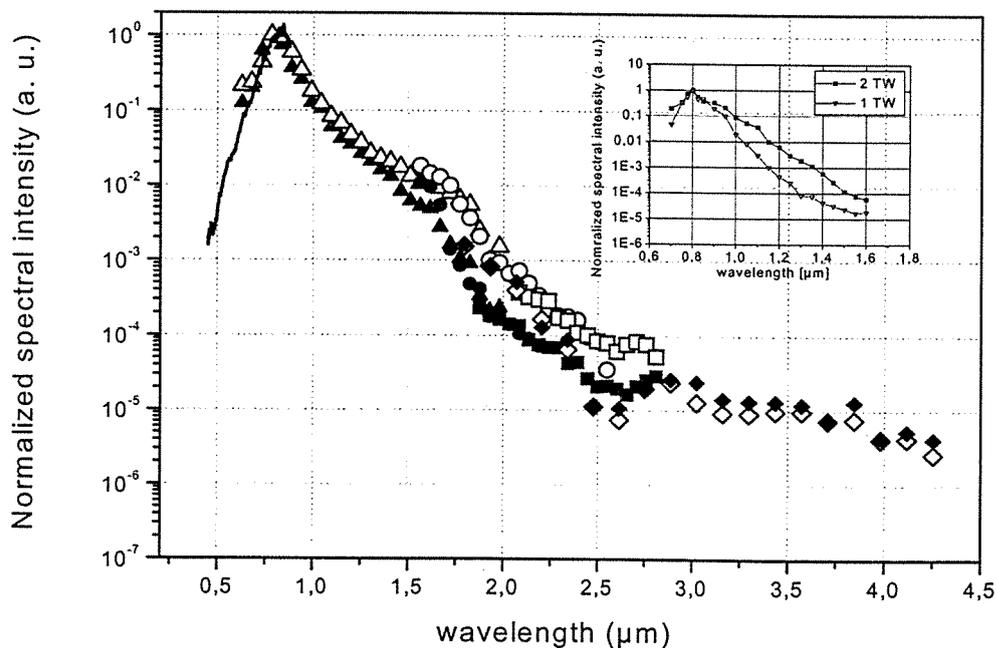


Fig. III-2-3. Profil spectral du supercontinuum mesuré de 400 nm à 4,5 μm .

L'encart dans la figure III-2-3 montre la dépendance de l'efficacité de conversion en puissance du faisceau incident.

En comparant le spectre d'émission du supercontinuum à un spectre d'absorption des principaux gaz polluants³⁵ (Fig. III-2-4), on voit clairement l'intérêt du supercontinuum qui couvre un grand nombre de bandes d'absorption

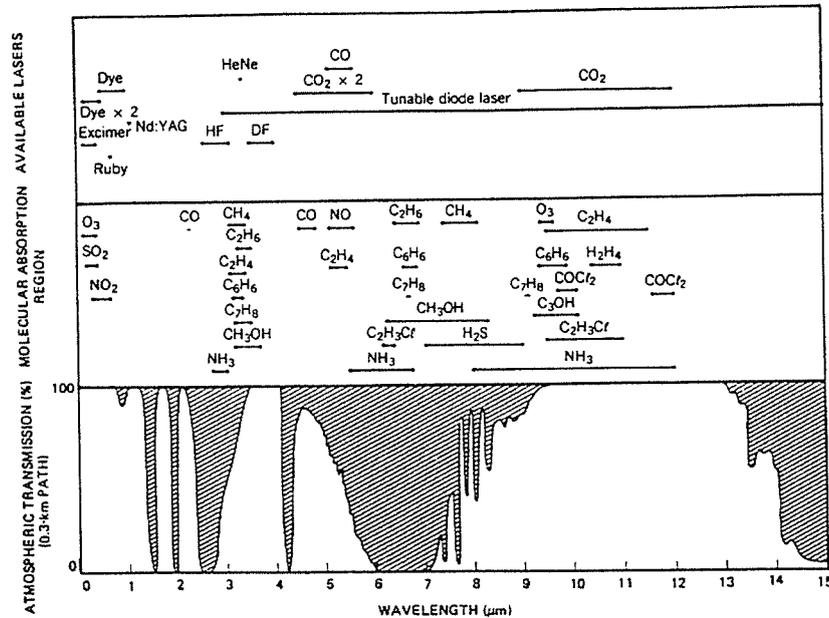


Fig. III-2-4. La transmission de l'atmosphère et les bandes d'absorption des gaz polluants. Selon la référence 35.

III.2.4 Spectre d'absorption du méthane avec le supercontinuum

Pour illustrer l'absorption dans l'infrarouge d'un gaz polluant, nous avons enregistré le spectre d'absorption du méthane dans la bande à 1,7 μm. Une cellule remplie de méthane à 1 atmosphère était alors placée devant la fente d'entrée du spectromètre sur le trajet de la lumière blanche. Le spectre obtenu est montré sur la figure III-2-5 avec un fit selon les données spectroscopiques de la base de HITRAN.

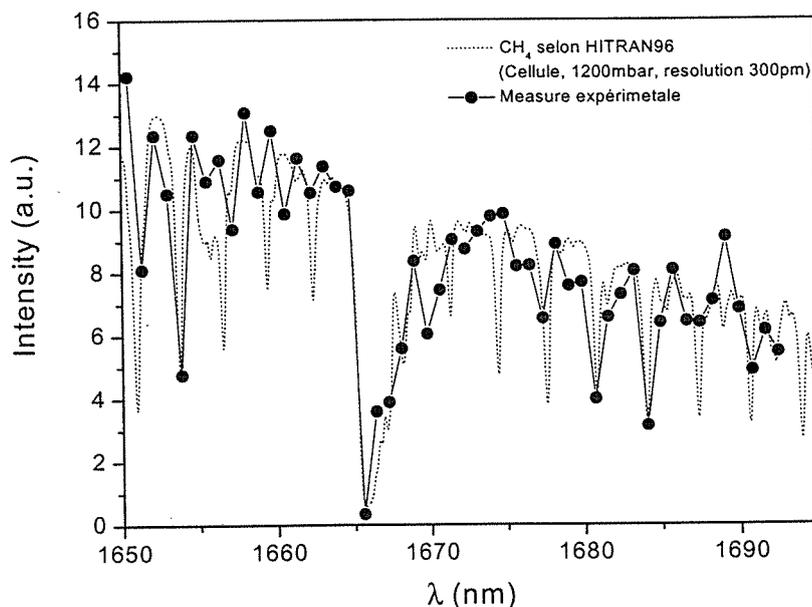


Fig. III-2-5. Le spectre d'absorption du méthane comparé aux données spectroscopiques de la base de HITRAN.

III.2.5 Optimisation de l'émission du continuum

Nous avons optimisé l'intensité de la lumière blanche générée en comparant deux configurations d'envoi du faisceau dans l'atmosphère et en fonction de l'énergie et du chirp des impulsions.

Dans la première configuration (Fig. 3-2-6 a), le faisceau délivré par le système laser à LOA à Palaiseau est envoyé dans l'air parallèlement. Plusieurs filaments sont formés dans le faisceau automatiquement après une dizaine de mètres de propagation dans l'air. Le continuum est généré. Le faisceau se propage sur 76 mètres et est arrêté par un mur. La lumière diffusée sur le mur est collectée par un télescope et envoyée vers un détecteur à travers un filtre. Dans la deuxième configuration (Fig. 3-2-6 b), le faisceau est focalisé par une lentille de distance focale de 10 m. La lumière est blanche est générée essentiellement autour du foyer où un canal de plasma est formé. La lumière blanche est ensuite recollimatée par un miroir sphérique. Le même système de détection est utilisé.

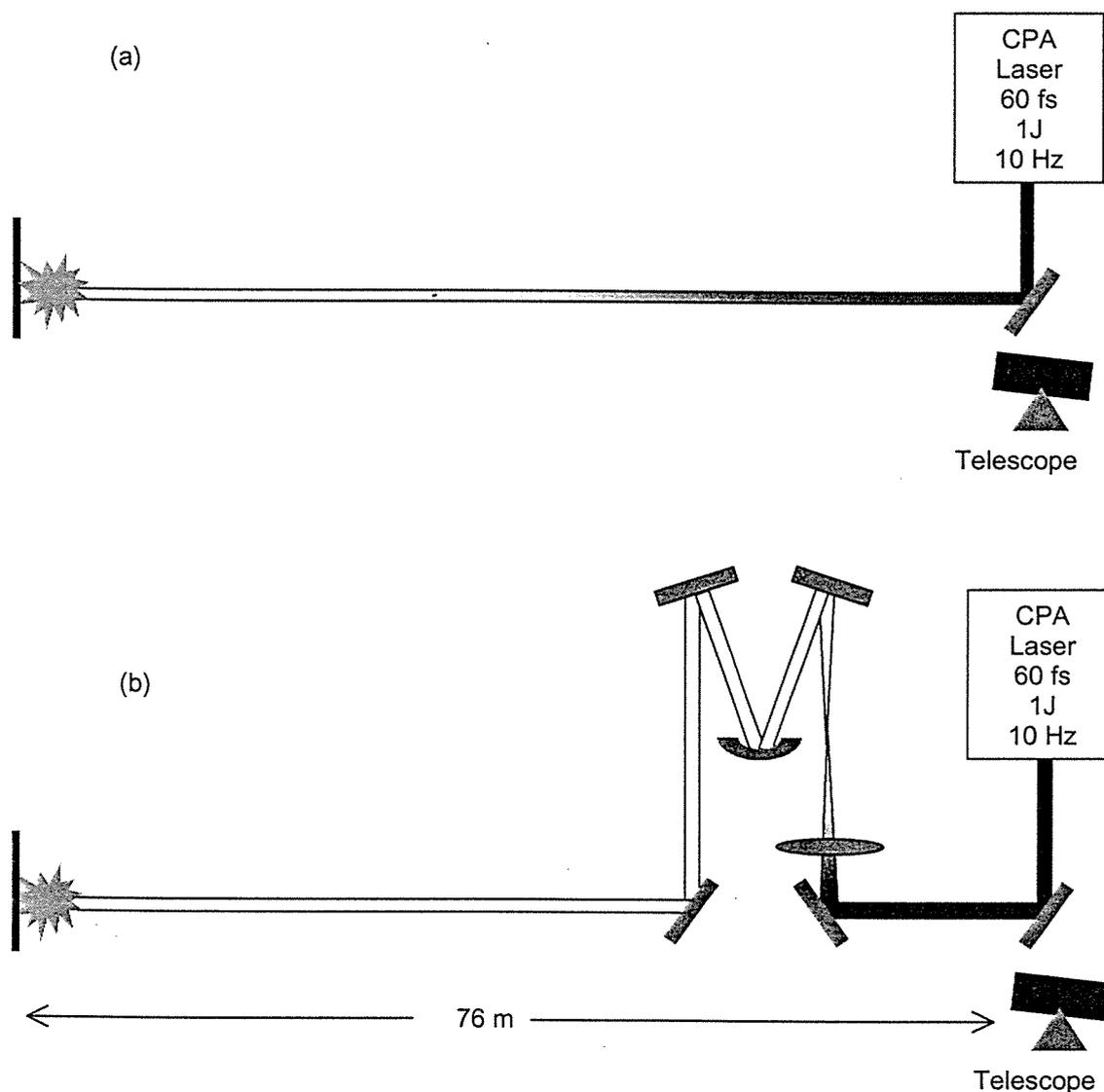


Fig. III-2-6. Deux configurations d'envoi du faisceau pour optimiser la génération du continuum.

Le résultat est montré sur la figure III-2-7 pour une détection dans la bande bleu-verte du continuum.

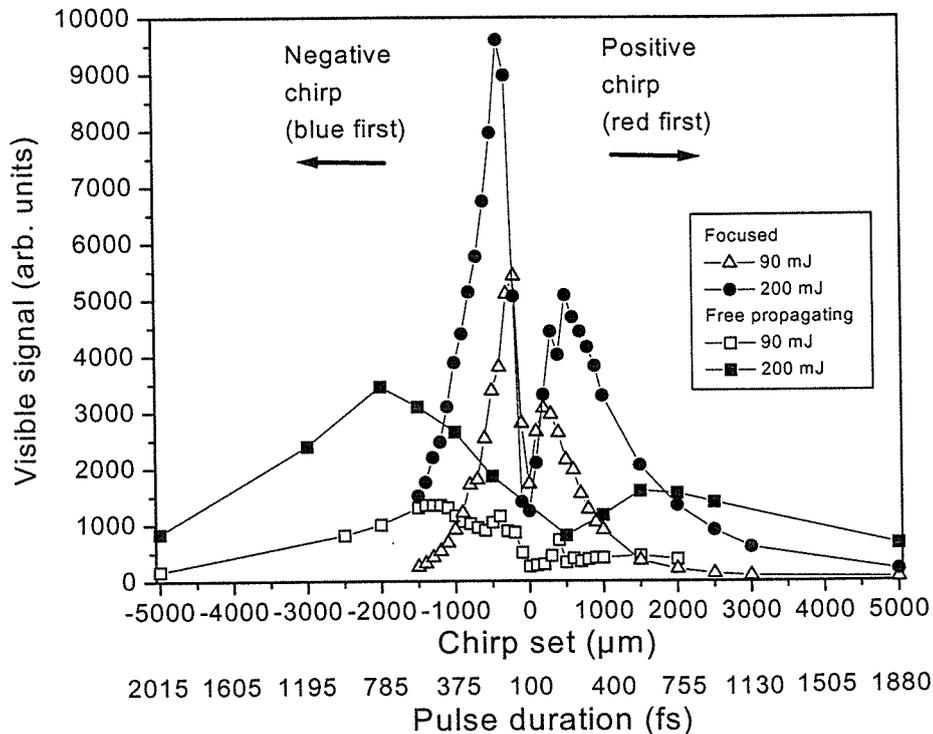


Fig. III-2-7. Intensité du continuum détectée dans la bande bleu-verte en fonction du chirp des impulsions, pour deux configurations de focalisation et deux différentes énergies.

Les principaux renseignements que nous pouvons tirer de ses mesures sont les suivants :

1. A la distance que nous avons effectué les mesures (76 m), la configuration focalisée génère plus de lumière blanche ;
2. Efficacité de conversion dépend sensiblement du chirp. Un chirp négatif est plus favorable à la génération du continuum, ce qui permet d'utiliser la technique de pre-chirp pour contrôler la localisation des filaments ;
3. Intensité du continuum augmente presque linéairement avec l'énergie des impulsions ;
4. On remarque aussi qu'il y a une diminution à chirp zéro pour les deux configurations. Cette diminution est due probablement aux effets nonlinéaires sur le hublot du compresseur, la lentille de focalisation et les miroirs ;
5. Finalement sur la distance de détection de 76 m, il est encore difficile de juger le comportement à une plus longue distance, plus proche de la situation du lidar. Dans la configuration du lidar, le signal détecté dépend bien sûr de l'intensité du continuum généré. Mais il dépend aussi sensiblement de la manière avec laquelle la lumière blanche générée est diffusée vers l'arrière.

Donc nous avons prolongé ce travail par une étude de la distribution angulaire de la lumière blanche générée dans un filament que je présente dans paragraphe suivant.

III.2.6 Démonstration d'une émission vers l'arrière du supercontinuum par un filament

III.2.6.a L'enjeu de l'investigation

En régime linéaire, un faisceau laser envoyé dans l'atmosphère est diffusé essentiellement par les processus de diffusion de Rayleigh et de Mie.^{36, 37} Dans un lidar, la lumière rétro-diffusée est collectée par le télescope et envoyé vers le détecteur. Les coefficients de rétro-diffusion sont très faibles pour la diffusion de Rayleigh ($\beta = 4,9 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ à 405 nm)³⁶ comme pour celle de Mie (dépendant de la taille et la longueur d'onde). Et en plus, la distribution angulaire de ces diffusions est quasiment isotrope, ce qui conduit à une décroissance en $1/r^2$ du signal lidar. La portée d'un lidar linéaire est donc limitée, pour un site urbain, à typiquement quelques kilomètres.

En régime nonlinéaire de propagation, notamment dans un filament, diffusion ou émission vers l'arrière du continuum était quelque chose d'inconnu. Pour tant l'extraordinaire portée qu'ont réalisée nos collègues à Berlin et à Jena pendant la première expérience de démonstration d'un lidar nonlinéaire femtosecond^{4, 5} suggère l'existence d'un mécanisme nonlinéaire de rétro-diffusion, qui induirait une émission directionnelle dans des filaments vers l'arrière, donc vers le télescope de réception.

L'existence d'un tel processus nonlinéaire confère un avantage définitif à un lidar nonlinéaire femtoseconde par rapport à un lidar linéaire. En plaçant des filaments dans l'atmosphère à une grande distance avec la technique de pre-chirp,⁵ on peut générer un supercontinuum à une distance voulue. Une fois générée, une partie du continuum pourrait être envoyée vers le télescope de réception sans beaucoup de divergence. Le signal ne subit donc pas d'atténuation à $1/r^2$, ce qui étendrait la portée du lidar à une grande distance. Cette propriété serait même encore plus intéressante dans l'infrarouge, parce que les diffusions de Rayleigh et de Mie y sont encore moins efficaces.

Il est donc essentiel pour le Projet Teramobile de déterminer la distribution angulaire de l'émission du continuum par un filament. Nous avons entrepris ce travail à Lyon à partir du début de l'année 2000. Les premiers résultats ont été présentés dans la conférence IQEC2000 en septembre 2000 à Nice, et un papier a été soumis à Optics Letters.

Par la suite de ce paragraphe, ces résultats sont présentés en plus de détails.

III.2.6.b Distribution angulaire du continuum autour d'un filament comparée aux diffusions de Rayleigh et de Mie

α . Montage expérimental

A Lyon, nous utilisons une chaîne d'amplification à dérivée de fréquence qui produit des impulsions à 8 mJ d'énergie à 810 nm dans une durée de 120 fs avec une cadence de 20 Hz. Le montage expérimental est illustré sur la figure III-2-8. Le faisceau de sortie d'une section de 12 mm de diamètre est légèrement focalisé par un miroir sphérique à rayon de courbure de 10 m. Après ce miroir, on a typiquement 6 mJ. Un mono-filament est formé à partir du foyer géométrique du miroir sphérique à 5 m de celui-ci avec une émission conique observable avec un écran placé sur le trajet du faisceau. Un goniomètre est installé à 1,5 m du foyer où l'émission conique est intense et avec beaucoup de couleur. Une fibre liquide de diamètre de 6 mm est fixée sur le bras du goniomètre, son angle de vue est restreint par un tube non transparent de longueur de 80 cm et de diamètre de 6 mm. L'angle de vue résultant est de $0,86^\circ$. L'autre bout de la fibre est connecté sur un photomultiplicateur. Un filtre de couleur bleue-verte (BG38) est monté devant le PM pour fixer une bande de détection dans le

continuum (350 nm à 600 nm). La zone d'analyse est entièrement couverte par une hotte à air filtré laminaire qui produit un flux d'air sans poussière.

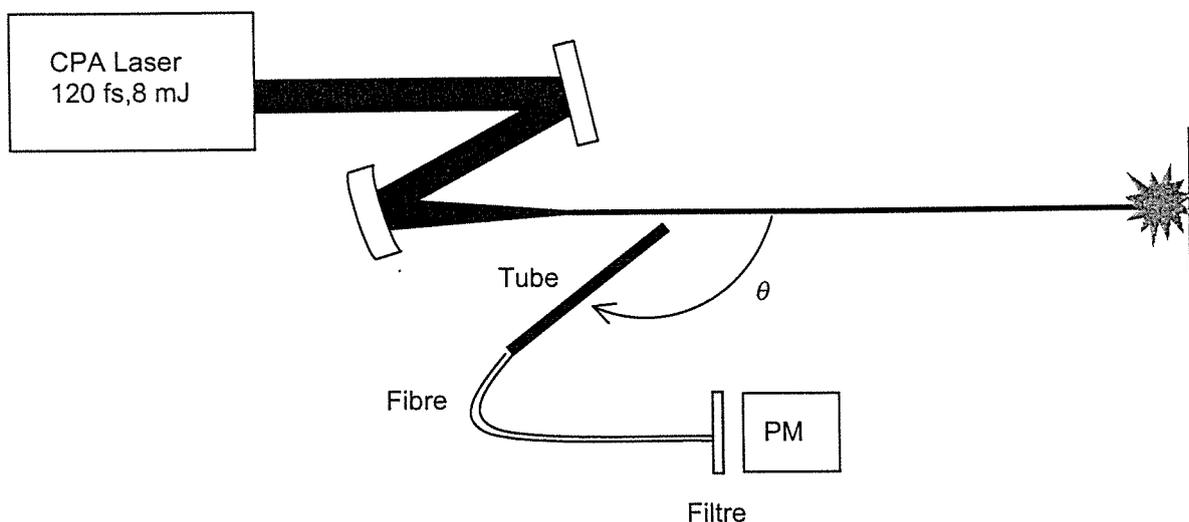


Fig. III-2-8. Montage expérimental pour mesurer la distribution angulaire du continuum émis par un filament.

β . Calibration avec le régime linéaire

Pour avoir une référence, nous avons d'abord calibré notre système de détection avec un faisceau de puissance faible, donc se propageant linéairement. Ce faisceau est obtenu avec un

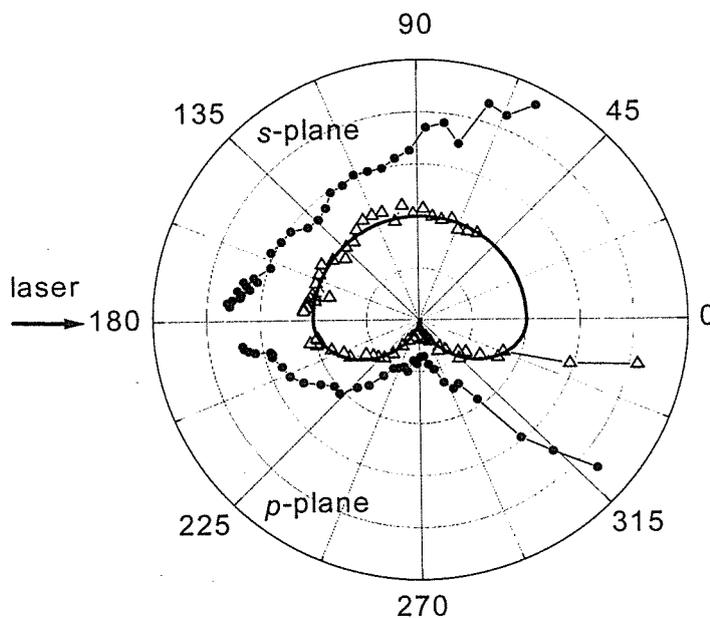


Fig. III-2-9. Distributions angulaires dans le régime linéaire. Les triangles représentent les mesures dans un air propre (avec un fit Rayleigh), et les points celles dans un air contenant des poussières.

doublage du faisceau à 810 nm par un cristal de KDP inséré dans le trajet du faisceau après (mais tout près de) le miroir sphérique. L'efficacité de conversion est d'environ de 10 %. Un miroir dichroïque est ensuite utilisé pour enlever le fondamental. Les distributions angulaires de la lumière diffusée à 405 nm sont présentées à la figure III-2-9.

Les analyses sont faites dans les deux plans par rapport à la polarisation du faisceau incident: le plan perpendiculaire à la polarisation (*s*-plan) et le plan parallèle à la polarisation (*p*-plan) et dans une atmosphère claire (hotte en marche) aussi bien dans une atmosphère avec des poussières (hotte éteinte).

Dans une atmosphère claire la diffusion est due à des molécules et est décrite par la distribution de Rayleigh.^{36, 37} Cette distribution est isotrope dans le *s*-plan et est proportionnelle à $\cos^2\theta$ dans le *p*-plan. Sur la figure III-2-9, les triangles présentent des mesures expérimentales. Pour comparer avec la distribution de Rayleigh, les données brutes ont été divisées par la fonction $1/\sin\theta$. Cette fonction est proportionnelle à la longueur du segment de faisceau vu par le détecteur à un angle θ . On voit ici les points expérimentaux sont bien ajustés par la distribution de Rayleigh.

Dans une atmosphère contenant des poussières, la diffusion de Mie sur des particules contribue au signal total. Bien que les détails de la diffusion dépendent de la distribution en taille des particules, les principales caractéristiques de la diffusion de Mie sont clairement visibles dans la distribution expérimentale: une anisotropie sur la distribution angulaire et une diffusion préférentielle à petit angle et à la rétro-diffusion.

Remarquons que pour de petits angles vers l'avant, le signal augmente brutalement à cause de la lumière directe du faisceau.

χ . Rétro-diffusion nonlinéaire préférentielle due à une auto-réflexion sur un gradient de l'indice longitudinale induit par une impulsion laser

La distribution du continuum autour d'un filament est en suite mesurée dans la bande bleue-verte. Nous enlevons le cristal doubleur et le miroir dichroïque. Un mono-filament est formé à partir du foyer géométrique. Le résultat est montré sur la figure III-2-10, en comparaison avec les points expérimentaux en régime linéaire. Les mesures ont été faites dans les deux polarisations et dans un air propre aussi bien que dans un air contenant des poussières. Une normalisation est appliquée sur les données brutes pour que dans chaque plan de polarisation le signal nonlinéaire ait la même intensité que le signal linéaire autour de $\theta = 90^\circ$. Cette normalisation permet de comparer les intensités vers la rétro-diffusion pour une diffusion transversale normalisée. Une deuxième normalisation est ensuite appliquée entre les deux plans de polarisation pour faire rejoindre les courbes vers la rétro-diffusion.

Un résultat remarquable est que pour une diffusion transversale normalisée, la quasi-rétro-diffusion nonlinéaire est toujours plus intense quel que soit le plan de polarisation et dans un air propre aussi bien que dans un air contenant des poussières. Cette augmentation est d'un facteur 2 environ à $\theta = 176,5^\circ$, l'angle expérimental le plus proche de la rétro-diffusion.

Cette découverte est très importante pour l'application lidar. La lumière blanche détectée par le télescope est donc aussi contribué par un processus nonlinéaire qui superpose sur le signal dû à la rétro-diffusion linéaire de Rayleigh et de Mie. Cette contribution nonlinéaire est du même ordre de grandeur que la diffusion linéaire à un angle de $\theta = 176,5^\circ$. Pour la diffusion de Rayleigh, le coefficient de rétro-diffusion dans l'atmosphère au niveau de la mer est connu³⁶: $\beta = 4,9 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ à 405 nm. On peut donc calculer l'efficacité de rétro-diffusion de Rayleigh pour la configuration de nos expériences: un volume de diffusion de longueur de 50 cm et un angle solide de détection de 0,1 sr. Ce calcul donne une efficacité de $2,5 \times 10^{-7}$. Cette valeur donne aussi l'ordre de grandeur de la rétro-diffusion nonlinéaire mesurée à $\theta = 176,5^\circ$.

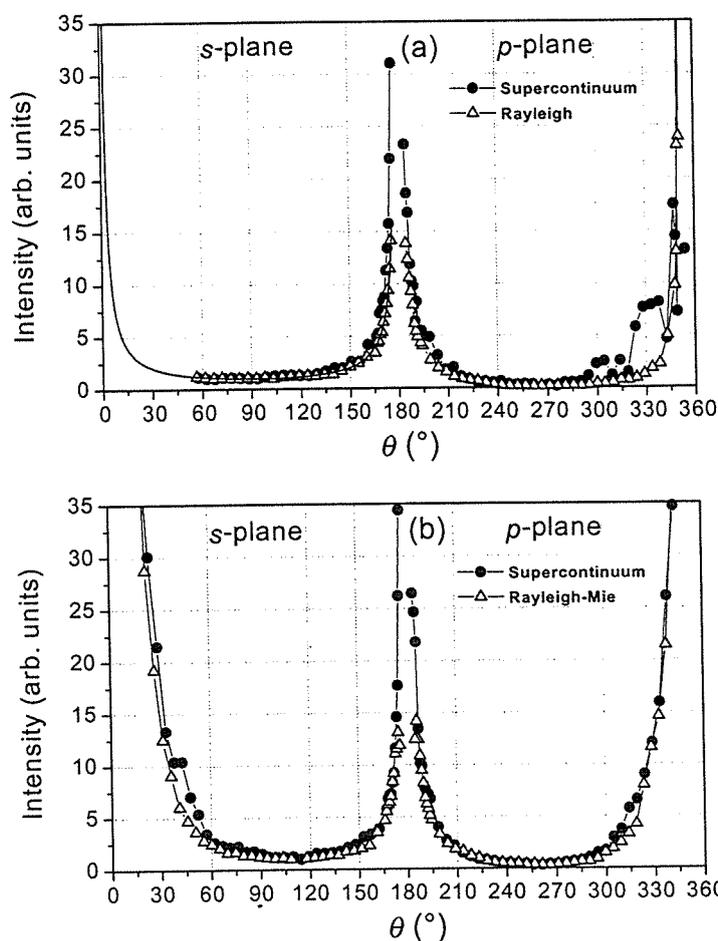


Fig. III-2-10. Distributions angulaires dans le régime non linéaire comparées à celles dans le régime linéaire. (a) air propre [fit Rayleigh $1/\sin(\theta)$ pour le s-plan] et (b) air contenant des poussières.

Nous interprétons cette diffusion non linéaire par une réflexion du continuum généré sur un gradient de l'indice longitudinal induit par l'impulsion laser elle-même. Il est bien connu que le profil transversal d'un faisceau laser induit un gradient transversal de l'indice, ce qui conduit à l'auto-focalisation. Pour une impulsion, le profil temporel du paquet d'onde peut *a priori* créer un gradient de l'indice longitudinal. Et l'impulsion peut venir s'auto-réfléchir partiellement sur ce gradient.

La situation réelle dans un filament est beaucoup plus compliquée, on doit considérer des processus tels que la création du plasma, la modification du profil spatio-temporel de l'impulsion, et l'interaction entre les différentes parties d'une impulsion. Néanmoins, on peut considérer le scénario suivant : une impulsion est dynamiquement guidée^{33, 34} la partie avant de l'impulsion est tantôt focalisée par l'effet Kerr et tantôt défocalisée par le plasma (créé par l'intensité importante due à l'auto-focalisation) ou la diffraction naturelle. Cette oscillation de la taille mais aussi de l'intensité de l'impulsion induit dans l'espace une succession de zones à indice élevé (effet Kerr) et à indice réduit (plasma ou zone à faible intensité sans effet Kerr). Ceci correspond à un réseau d'indice imprimé par la partie avant de l'impulsion. Ce réseau ne disparaît pas immédiatement après le passage de la première moitié de l'impulsion, il agit donc sur la partie arrière de l'impulsion, ainsi le continuum généré dans cette partie de l'impulsion. Donc on peut prévoir une réflexion partielle du continuum généré.

Le changement de l'indice dû à l'effet Kerr peut être calculé pour une impulsion de 120 fs, 1 mJ et guidée dans un filament à 100 μm de diamètre, en utilisant la valeur de l'indice nonlinéaire instantané (contribution électronique) de l'air³⁸ $n_2 = 2,9 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$. On trouve une valeur de $\Delta n = 3,1 \times 10^{-5}$. Pour le plasma, le changement de l'indice est lié à la densité électronique :

$$\Delta n_{\text{plasma}} = -\frac{\omega_p^2}{2\omega^2}, \text{ où } \omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m\epsilon_0}} \text{ est la fréquence de plasma.}$$

Avec une densité électronique n_e typique,²²⁻²⁴ une valeur de l'ordre de 10^{22} peut être trouvée pour Δn_{plasma} . On en déduit donc que le réseau d'indice induit par une impulsion a une profondeur de modulation de l'ordre de 10^{-5} . Si on suppose une variation en créneau de l'indice, une simple application de la formule de Fresnel nous donne un coefficient de réflexion de 10^{-5} .

Notre estimation donne donc une valeur de deux ordres de grandeur plus élevée que la valeur expérimentale. Néanmoins notre mesure est effectuée à $\theta = 176,5^\circ$, l'estimation théorique nous permet d'espérer une réflexion beaucoup plus importante si l'on s'approche davantage de la rétro-diffusion à 180° .

δ. Comportement en fonction de longueur d'onde

La distribution angulaire du continuum a été mesurée à une autre bande dans le rouge entre 600 nm et 650 nm. Dans ce cas-là le filtre de couleur bleu-verte est remplacé par trois filtres interférentiels (LL600, LS650, et LS700) dont la combinaison réalise la bande passante nécessaire. Le résultat obtenu est montré sur la figure III-2-9, en comparaison avec les mesures dans la bande bleu-verte.

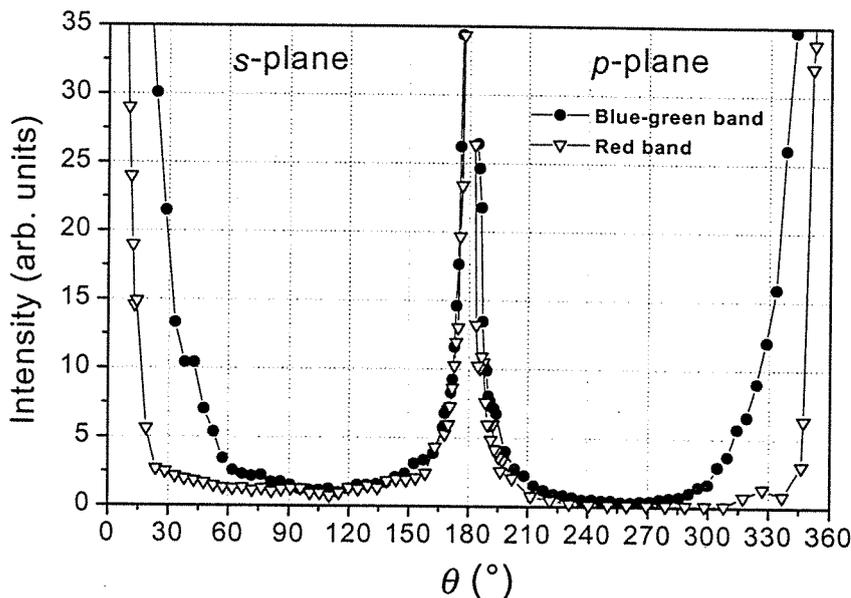


Fig. III-2-11. Distributions angulaires du continuum détectées dans la bande rouge en comparaison avec celles dans la bande bleu-verte.

Les données brutes sont normalisées pour qu'il y ait la même intensité vers la rétro-diffusion pour les deux bandes. Cette présentation montre une diminution de signal à la diffusion transversale pour la bande rouge. Cette diminution est interprétée par la décroissance de l'efficacité des diffusions de Raleigh et de Mie pour une longueur d'onde plus grande. Cette

observation implique le fait que l'importance relative de la diffusion nonlinéaire par rapport à la diffusion linéaire augmenterait dans l'infrarouge, ce qui est un argument en faveur de l'application du lidar nonlinéaire dans l'infrarouge.

III.2.7 Conclusion

Nous avons pendant cette première année du projet Teramobile réalisé une série d'expériences avec un faisceau en propagation horizontale. Le but de ces expériences est de mieux caractériser la propagation nonlinéaire des impulsions ultra-intenses. Ainsi le profil spectral a été mesuré de 400 nm à 4,5 μm et l'absorption à l'IR a été démontrée avec la bande à 1,7 μm du méthane. Nous avons en suite comparer les deux configurations d'envoi du faisceau pour une génération plus efficace du continuum. Un gros effort a été fourni pour déterminer la distribution angulaire du continuum émis d'un filament. Une augmentation de la rétro-diffusion a été démontrée pour la première fois. Ce résultat est très important pour l'application lidar. Pour aller plus loin, un diagnostic sur une plus grande échelle ($\sim\text{km}$) est envisagé. Il est également intéressant de déterminer le comportement à 180° et d'effectuer une mesure de la distribution angulaire résolue en spectre. Une meilleure caractérisation de la propagation à longue distance va permettre l'application lidar d'être réalisée sur une base solide.

Références :

1. A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, « Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air », *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995).
2. P.B. Corkum, C. Rolland, and T. Srinivasan-Rao, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2268 (1986) ; Hajime Nishioka, Wataru Odajima, Ken-ichi Ueda, and Hiroshi Takuma, « Ultrabroadband flat continuum generation in multichannel propagation of terawatt Ti:sapphire laser pulses », *Opt. Lett.* **20**, 2505 (1995).
3. L. Wöste, C. Wedekind, H. Wille, P. Rairoux, M. Rodriguez, B. Stein, R. Sauerbrey, H. Schillinger, F. Ronneberger, S. Niedermeier, « Femtosecond Lidar », dans *Ultrafast Phenomena XI*, Ed: T. Elsaesser *Chem. Phys.* **63**, p118-120(1998).
4. L. Wöste, C. Wedekind, H. Wille, P. Rairoux, Ch. Werner, B. Stein, S. Niedermeier, H. Schillinger, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, « Femtosecond Atmospheric Lamp », *Laser und Optoelektronik*, **E 2688** (1997).
5. P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wedekind, H. Wille, L. Wöste: « Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses », *Appl. Phys. B*, in press (2000).
6. J. Kasparian, B. Krâmer, J.P. Dewitz, S. Vajda, P. Rairoux, B. Vezin, V. Boutou, T. Leisner, W. Hübner, K. Bennemann, L. Wöste et J.P. Wolf, « Angular Dependences of THG-Generation from Microdroplets », *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2952 (1997).
7. Size Dependence of Non-Linear Mie Scattering in Microparticles, J. Kasparian, B. Vezin, T. Leisner, L. Wöste, J.P. Wolf, *Journal of the Optical Society of America B* **15**, 1918 (1998).
8. Steven C. Hill, Véronique Boutou, Jin Yu, Stephane Ramstein, Jean-Pierre Wolf, Yong-le Pan, Stephan Holler, and Richard K. Chang, « Enhanced backward-directed multi-photon-excited fluorescence from microcavities », *Phys. Rev. Lett.* **85**, 54 (2000).
9. Y.R. Shen, « The Principle of Nonlinear Optics », John Wiley & Son (1984).
10. Robert W. Boyd, « Nonlinear Optics », Academic Press (1992).
11. G.A. Askar'yan, *Sov. Phys. JETP* **15**, 1088, 1161 (1962).
12. M. Hercher, *J. Opt. Soc. Am.* **54**, 563 (1964).
13. R.Y. Chiao, E. Garmire, and C.H. Townes, *Phys. Rev. Lett.* **13**, 479 (1964) [Erratum, **14**, 1056 (1965)].
14. G.M. Zerev, E.K. Maldutis, and V.A. Pashkov, *JETP Lett.* **9**, 61 (1969) ; G.M. Zerev and V.A. Pashkov, *Sov. Phys. JETP* **30**, 616 (1970).
15. C.R. Giuliano and J.H. Marburger, *Phys. Rev. Lett.* **27**, 905 (1971).
16. N. Bloembergen and P. Lallemand, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 81 (1966).
17. R.G. Brewer, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 8 (1967).
18. T.K. Gustafson and J.P. Tran, and H.A. Haus, and J.R. Lifshitz, and P.L. Kelley, « Self-modulation, self-steepening, and spectral development of light in small-scale trapped filaments », *Phys. Rev.* **177**, 306 (1969).
19. F. Shimizu, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 1097 (1967).
20. E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B.S. Prade, M.A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz, « Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air », *Opt. Lett.* **21**, 62 (1996).
21. A. Brodeur, C.Y. Chien, F. A. Ilkov, S.L. Chin, O.G. Kosareva, and V. P. Kandidov, « moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air », *Opt. Lett.* **22**, 304 (1997). O.G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C.Y. Chien, and S.L. Chin, « Conical emission from laser-plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air », *Opt. Lett.* **22**, 1332 (1997).

22. H. Schillinger, R. Sauerbrey, « Electrical Conductivity of Long Plasma Channels in Air Generated by Self-guided Femtosecond Laser Pulses », *Appl. Phys. B* **68**, 753 (1999);
23. B. La Fontaine, F. Vidal, Z. Jiang, C. Y. Chien, D. Comtois, A. Desparois, T. W. Johnston, J.C. Kieffer, H. Pépin, and H.P. Mercure, *Phys. Plasmas* **6**, 1615 (1999);
24. A.S. Tzortzakis, B. Prade; M. Franco, A. Mysyrowicz, « Time-evolution of the plasma channel at the trail of a self-guided IR femtosecond laser pulse in air », *Opt. Commun.* **181**, 123, (2000).
25. J.H. Marburger and W.G. Wagner, *IEEE J. Quantum. Electron.*, **QE-3**, 415 (1967); G.L. McAllister, J.H. Marburger, and L.G. DeShazer, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1648 (1968).
26. J.K. Ranka, R.W. Schirmer, and A.L. Gaeta, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3783 (1996).
27. Jens Schwarz, Patrick Rambo, Jean-Claude Diels, Miroslav Kolesik, Ewan M. Wright, Jerry V. Moloney, « Ultraviolet filamentation in air », *Opt. Commun.* **180**, 383 (2000).
28. S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, S.D. Moustazis, « Nonlinear propagation of subpicosecond ultraviolet laser pulses in air », *Opt. Lett.* **25**, 1270 (2000).
29. Y.R. Shen, *Quantum Electron.* **4**, 1 (1975).
30. J.H. Marburger, *Prog. Quantum Electron.* **4**, 35 (1975).
31. D. Strickland and P.B. Corkum, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 492 (1994).
32. H.R. Lange, G. Grillon, J.F. Ripoche, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, and A. Mysyrowicz, « Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air : moving focus or pulse self-guiding ? », *Opt. Lett.* **15**, 120 (1998).
33. M. Mlejnek, E.M. Wright, and J.V. Moloney, « Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagation in air », *Opt. Lett.* **23**, 382 (1998).
34. M. Mlejnek, E.M. Wright, and J.V. Moloney, « Power dependence of dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagation in air », *Optics Express*, **4**, 223 (1999).
35. Markus W. Sigrist, « Air monitoring by spectroscopic techniques », Wiley (1994).
36. R.M. Measures, "Laser Remote Sensing", Krieger Publishing Company, Malabar, Florida (1992).
37. C.F. Bohren and D.R. Huffman, « Absorption and Scattering of Light by Small Particles », Wiley-Interscience, New-York, (1983).
38. C.H. Lin, J.P. Heritage, T.K. Gustafson, R.Y. Chiao, and J.P. McTague, *Phys. Rev. A* **13**, 813 (1976).

Nos publications sur ce travail :

1. J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J.P. Wolf, Y.B. André, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, H. Wille, L. Wöste, « Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere », *Opt. Lett.* **25**, 1399 (2000).
2. J. Yu, D. Mondelain, G. Ange, R. Volk, S. Niedermeier, and J.P. Wolf, J. Kasparian, R. Sauerbrey, « Backward supercontinuum emission from a filament generated by ultrashort laser pulses in air », submitted to *Opt. Lett.* (2000).

Rapports de stage soutenus sur ce travail dans notre équipe :

1. Guillaume Ange, « Etude de la rétrodiffusion de lumière blanche induite par la propagation nonlinéaire d'impulsions femtosecondes », Stage de DEA Particules, Noyaux, Atomes et Photons, Lyon 1 – ENS Lyon, (2000).

2. Romain Volk, « Etude expérimentale de la propagation d'impulsions laser femtosecondes », Stage de la deuxième année du Magistère Science de la Matière, Lyon 1 – ENS Lyon, (2000).

Conclusion et Perspectives

Et voilà j'arrive au bout de la rédaction avec la satisfaction d'un randonneur qui, après une longue journée de marche, arrive au refuge. En se retournant, il constate le chemin parcouru et dit "Ma journée est plutôt bien remplie, je mérite un bon repos et demain je repartirai avec une énergie renouvelée."

En conclusion, je dirais que la trajectoire que j'ai suivie est quelque peu ordinaire mais presque logique. Les hasards n'interviennent que pour les détails de la réalisation. J'ai pu travailler dans plusieurs laboratoires sur plusieurs thématiques de recherche, ce qui m'a permis d'intéresser les différents domaines de recherche, de côtoyer les différentes communautés scientifiques, et d'utiliser les différentes techniques expérimentales. C'est sur cette base que je construirai le future.

Pour l'avenir, mes cultures scientifiques et ma passion pour le laser et pour l'interaction entre le rayonnement et la matière, qui est riche, spectaculaire, et par fois surprenante, détermineront les grandes orientations de la poursuite de ma carrière. Je suis convaincu que les applications des lasers dans les domaines aussi divers que la physique, la chimie, la biologie ou la médecine conduiront à des résultats intéressants et approfondiront en même temps nos connaissances sur les interactions entre le rayonnement et la matière.

Plus concrètement, mon projet de recherche à court terme est le Teramobile. Connaître les propriétés de la propagation des impulsions femtosecondes multi-terawatt dans l'air et appliquer celles-ci pour la mesure des polluants atmosphériques sont des objectifs à atteindre. Les campagnes d'expériences sont d'ores et déjà programmées. J'y participerai activement avec mes collègues teramobilistes. .

A plus long terme, avec des opportunités qui se présenteront, je développerai des projets qui mettront en jeu le laser et ses applications, la spectroscopie, l'imagerie, et le diagnostic. Les différents types de laser dont je maîtrise la mise en œuvre peuvent être utilisés : les diodes laser avec leur compacité, leur fiabilité et les lasers solides femtosecondes avec leurs extraordinaires courte durée et haute puissance crête. Avec les applications comme la motivation et le but, j'étudierai les processus fondamentaux d'interaction linéaire ou non-linéaire entre le rayonnement et la matière.

Le domaine des impulsions laser ultra-courtes et ultra-intenses attirait aussi mes attentions. Dans ce régime, l'interaction laser-matière présente des caractéristiques inhabituelles. Les processus non-linéaires et l'ionisation du milieu sont des figures dominantes. La courte durée des impulsions permet les études résolues dans le temps des processus dynamiques rapides. Des activités de recherche dans ce domaine en pleine croissance conduiront à des avancements aussi bien en physique fondamentale qu'en applications.

Finalement, je poursuivrai mes activités d'enseignement en m'efforçant de les rendre toujours plus attrayantes et plus intéressantes pour les étudiants. Je pense qu'une activité de recherche active permet un enseignement vivant, et que le contact avec les étudiants est une garantie d'un esprit jeune pour un chercheur.

Annexe A

Liste des travaux publiés

I. Articles publiés dans des revues et proceedings de conférences avec comité de lecture

1. J. Yu, M. Desaintfuscien, F. Plumelle, « *Laser cooling of Mg^+ ions and first experimental observation of resonant particle transport in a Penning trap* », Laser Spectroscopy VIII, **55**, 75 (1987).
2. J. Yu, F. Plumelle, M. Desaintfuscien, « *Laser cooling and resonant transport of Mg^+ in a Penning trap* », Frequency Standards and Metrology, Ed. A. de Marchi, Springer-Verlag, 449, (1988).
3. J. Yu, M. Desaintfuscien, F. Plumelle, « *Ion density limitation in a Penning trap due to the combined effects of asymmetry and space charge* » Appl. Phys. B **48**, 51 (1988).
4. J.-L. Picqué, A. Clairon, J. Yu et S. Guellati, « *Le refroidissement laser d'atomes en métrologie des fréquences* », Ann. Phys. C1 **15**, 31 (1990).
5. J. Yu, S. Guellati, M.-C. Gagné, A. Clairon et J.-L. Picqué, « *Observation de la résonance de l'horloge atomique sur des atomes de césium refroidis par laser* », Ann. Phys. C2 **16**, 147 (1991).
6. J. Yu, S. Guellati, M.-C. Gagné, A. Clairon and J.-L. Picqué, « *Microwave resonance on a laser-cooled cesium atomic beam: prospects for a cesium frequency standard* », Opt. Commun. **82**, 27 (1991).
7. C. Valentin, M.-C. Gagné J. Yu and P. Pillet, « *One-dimension sub-Doppler molasses in the presence of static magnetic field* », Europhys. Lett. **17**, 133 (1991).
8. P. Pillet, M.-C. Gagné, C. Valentin and J. Yu, « *Experimental study of one-dimension sub-Doppler molasses effects* », Laser Spectroscopy, TENICOLS '91, Ed. M. Ducloy, E. GIACOBINO et G. Camy, World Scientific, 50 (1992).
9. J. Yu, M.-C. Gagné, C. Valentin, R.-L. Yuan and P. Pillet, « *Narrowband frequency control of an injection-locked diode-laser battery* », J. Phys. III **2**, 1615 (1992).
10. J. Yu, M.-C. Gagné, C. Valentin, S. Guellati, J. Djemaa, R.-L. Yuan and P. Pillet ; « *Effects of a static magnetic field on sub-Doppler molasses: manipulation of cesium atoms* », IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement **42**, 109 (1993).
11. P. Pillet, C. Valentin, R.-L. Yuan and J. Yu, « *Transfer by adiabatic following in a multilevel system* », Phys. Rev A **48**, 845 (1993).
12. P. Pillet, J. Yu, J. Djemaa and P. Nosbaum, « *Transversal magneto-optical compression of a frequency-chirping slowed cesium atomic beam* », Laser Spectroscopy, XIth International conference, Ed. L. Bloomfield, Th. Gallagher, D. Larson, AIP Press, American Institut of Physics, New York, 73 (1993).
13. J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum and P. Pillet, « *Funnel with orientated Cs atoms* », Opt. Commun. **112**, 136 (1994).
14. C. Valentin, J. Yu, and P. Pillet, « *Adiabatic transfer in $j \rightarrow j$ and $j \rightarrow j-1$ transitions* », J. Phys. II France, **4**, 1925 (1994).
15. P. Nosbaum, A. Bleton, L. Cabaret, J. Yu, T.-F. Gallagher and P. Pillet, « *Anticrossing spectroscopy of Cs Rydberg states* », J. Phys. B **28**, 1707 (1995).
16. J. Yu, M. Douard, P. Rambaldi, B. Vezin, and J.-P. Wolf, « *Laser-diode injection seeding of a flashlamp-pumped Q-switched $Ti:Al_2O_3$ laser oscillator* », Opt. Commun, **132**, 263 (1996).

17. J. Yu, M. Douard, P. Rambaldi, B. Vezin, and J.-P. Wolf, « *Laser-diode injection seeding of a flashlamp pumped Ti:Sapphire for Lidar applications* », *Advanced in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, A. Ansmann, R. Neube, P. Rairoux, U. Wendinger, Ed. Springer Verlag, Heidelberg, 463 (1996).
18. J. Yu and P. Pillet, « *Laser cooling of cesium atoms* », *CCAST-WL Workshop series*, Ed. Y.Z. Wang, Préfacé par le Prix Nobel de Physique T.D. Lee, **70**, 15 (1996).
19. J. Yu, P. Rambaldi, and J.-P. Wolf, « *Dual wavelength diode seeded Ti:Sapphire laser for DIAL applications* », *Appl. Opt.* **36**, 6864 (1997).
20. J. Kasparian, P. Rambaldi, E. Fréjafon, M. Pantani, J. Yu, B. Vezin, P. Ritter P. Viscardi, D. Weidauer and J.P. Wolf, « *Monitoring of urban aerosols using a combined Lidar/SEM method* », *Lidar atmospheric monitoring*, J.P. Wolf ed. SPIE 4104, 278 (1997).
21. E. Fréjafon, J. Kasparian, P. Rambaldi, J. Yu, B. Vezin, and J.P. Wolf, « *Three-dimensional analysis of urban aerosols by use of a combined Lidar, scanning electron microscopy and X-ray microanalysis* », *Appl. Opt.* **37**, 2231 (1998).
22. E. Fréjafon, J. Kasparian, P. Rambaldi, B. Vezin, V. Boutou, J. Yu et J.P. Wolf, « *Mesure 3D de la pollution atmosphérique par Lidar* », *Ann. Phys. Fr.* **23**, C1-127 (1998).
23. E. Fréjafon, J. Kasparian, P. Rambaldi, B. Vezin, V. Boutou, J. Yu, M. Ulbricht, D. Weidauer, B. Ottobriani, E. de Saeger, B. Krämer, T. Leisner, P. Rairoux, L. Wöste, and J.P. Wolf, « *Laser applications for atmospheric pollution monitoring* », *Eur. Phys. J. D* **4**, 231 (1998).
24. J. Kasparian, E. Fréjafon, P. Rambaldi, J. Yu, B. Vezin, J.P. Wolf, P. Ritter, and P. Viscardi, « *Characterization of urban aerosols using SEM-microscopy, X-ray and Lidar measurements* », *Atmospheric Environment*, **32**, 2957 (1998).
25. J. Yu, K. Giulietti, F. Surgen, A. Ross, J.P. Wolf, M. Ferriol, G. Foulon, C. Gautaudier, M.T. Cohen-Adad, and G. Boulon, « *Second harmonic generation in a micro-radius LiNbO₃ cylinder with quasi-elliptical cross section* », *Opt. Lett.* **24**, 394 (1999).
26. J. Yu, K. Giulietti, F. Sourgen, and J.P. Wolf, F. Carrillo Romo, C. Goutaudier, M.T. Cohen-Adad, G. Boulon, « *Second harmonic generation in a LiNbO₃ crystal fiber* », *J. Phys. IV France* **10**, Pr8-113 (2000).
27. Steven C. Hill, Véronique Boutou, Jin Yu, Stephane Ramstein, Jean-Pierre Wolf, Yong-le Pan, Stephan Holler, and Richard K. Chang, « *Enhanced backward-directed multi-photon-excited fluorescence from microcavities* », *Phys. Rev. Lett.* **85**, 54 (2000).
28. J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Nidermeier, J. Yu, J.P. Wolf, Y.B. André, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, H. Wille, L. Wöste, « *Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere* », *Opt. Lett.* **25**, 1399 (2000).
29. J. Yu, D. Mondelain, G. Ange, R. Volk, S. Nidermeier, and J.P. Wolf, J. Kasparian, R. Sauerbrey, « *Backward supercontinuum emission from a filament generated by ultrashort laser pulses in air* », submitted to *Opt. Lett.* (2000).

II. Présentations orales dans des conférences

1. F. Plumelle, M. Jardino, M. Desaintfuscien, and J. Yu, « *Thermalisation of ions in the Penning and Paul traps* », 4th European Frequency and Time Forum, Neuchatel, 1990.
2. J.-L. Picqué, A. Clairon, J. Yu et S. Guellati, « *Le refroidissement laser d'atomes en métrologie des fréquences* », COLOQUE 1, Villetaneuse, septembre 1990.
3. P. Pillet, J. Yu, C. Valentin, J. Djemaa, R.-L. Yuan et P. Nosbaum, « *Manipulation d'atomes par laser: application à l'optique et l'interférométrie atomiques* », OPTO '93, Paris, mars 1993.
4. J. Yu, R.-L. Yuan, C. Valentin, J. Djemaa, P. Nosbaum, and P. Pillet, « *Manipulation of*

- an atomic beam: incoherent and coherent processes* », European Workshop on Collisions Involving Laser Excited Atoms, Sandbjerg, Danemark, 18-20 février 1993.
5. J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum, and P. Pillet, « *Transversal magneto-optical compression of a frequency-chirping slowed cesium atomic beam* », European group on Atomic Spectroscopy (EGAS), Caen, juillet 1993.
 6. J. Yu « *Laser cooling and trapping* », « *Stabilisation of laser diodes* », Ecole d'été sur le refroidissement laser et la technique de stabilisation des diodes laser, Université de Beijing, août 1995
 7. J. Yu and P. Pillet, « *Laser cooling of cesium atoms* », CCAST-WL Workshop, Beijing, août 1996.
 8. J. Yu and J.P. Wolf « *Développement d'un oscillateur femtoseconde Cr:LiSAF pompé par diodes* », 3^e journées des phénomènes ultra-rapides, Bordeaux, Juin 1997.
 9. A. Kachanov, F. Stoeckel, J. Yu, E. Fréjafon and J.P. Wolf, « *Intra-cavity laser spectroscopy with laser diode pumped solid-state laser* », CLEO, Hambourg, 1997.
 10. J. Yu, K. Giulietti, F. Sourgen, A. Ross, and J.P. Wolf, M. Ferriol, G. Foulon, C. Goutaudier, M.T. Cohen-Adad, and G. Boulon, « *Micro-doubleur pour impulsions femtosecondes* », 4^e journées des phénomènes ultra-rapides, Dijon, Juin 1999.
 11. J. Yu, K. Giulietti, F. Sourgen, and J.P. Wolf, F. Carrillo Romo, C. Goutaudier, M.T. Cohen-Adad, G. Boulon, « *Micro-doubler with a LiNbO₃ crystal fiber* », French-Israeli workshop on Optical Properties of Ionorganic Materials, Lyon, Décembre 1999.
 12. S. Nidermeier, M. Franco, J. Kasparian, D. Mondelain, A. Mysyrowicz, B. Prade, P. Rairoux, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, H. Schillinger, S. Tzortzakis, H. Wille, J.P. Wolf, L. Wöste, J. Yu, « *Light filaments generated by terawatt-laser pulses, conductivity, spectral content and lidar measurements* », ASSL, Devos, 02/2000.
 13. R. Sauerbrey, S. Nidermeier, M. Franco, J. Kasparian, D. Mondelain, A. Mysyrowicz, B. Prade, P. Rairoux, M. Rodriguez, F. Ronneberger, H. Schillinger, S. Tzortzakis, H. Wille, J.P. Wolf, L. Wöste, J. Yu, « *Long range propagation of terawatt laser pulses in the earth atmosphere* », CLEO/QELS, San Francisco, 05/2000.
 14. J. Yu, M. Franco, J. Kasparian, D. Mondelain, A. Mysyrowicz, S. Nidermeier, B. Prade, P. Rairoux, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, H. Schillinger, S. Tzortzakis, H. Wille, J.P. Wolf, L. Wöste, « *Characterization and optimization of infrared emission from light filaments observed in a fs-TW laser beam propagating in the atmosphere* », QELS, Nice, Septembre 2000.

III. Présentations par affiche dans des conférences

1. J. Yu, M. Desaintfuscien, F. Plumelle, « *Laser cooling of Mg⁺ ions and first experimental observation of resonant particle transport in a Penning trap* », 8th ICOLS, Are, Suède, juin 1987.
2. J. Yu, F. Plumelle, M. Desaintfuscien, « *Effects of total ion number on the limit temperature in a Penning trap laser cooling experiment* », 11th ICAP Paris, juillet 1988.
3. J. Yu, F. Plumelle, M. Desaintfuscien, « *Laser cooling and resonant transport of Mg⁺ in a Penning trap* », 4th Symp. on Frequency Standards and Metrology, Ancona, 1988.
4. J. Yu, S. Guellati, M.-C. Gagné, A. Clairon et J.-L. Picqué, « *Observation de la résonance de l'horloge atomique sur des atomes de césium refroidis par laser* », COLOQUE 2, Lille, septembre 1991.
5. P. Pillet, C. Valentin, R.-L. Yuan and J. Yu, « *Population transfer by adiabatic following in a multilevel system* », International Workshop in Atomic Interferometry, Constance, mai 1992.
6. J. Yu, M.-C. Gagné, C. Valentin, S. Guellati, J. Djemaa, R.-L. Yuan and P. Pillet,

- « *Effects of a static magnetic field on sub-Doppler molasses: manipulation of cesium atoms* », Conference on Precision Electromagnetic Measurements, Paris, juillet 1992.
7. P. Pillet, C. Valentin, R.-L. Yuan and J. Yu, « *Population transfer by adiabatic following in a multilevel system* », 13th ICAP, Munich, août 1992.
 8. J. Yu, R.-L. Yuan, C. Valentin, J. Djemaa, et P. Pillet, « *Injection d'une diode-laser de puissance à surface émissive étendue* », Colloque interdisciplinaire "Science, Technologie et Lasers de Puissance" du comité national de la recherche scientifique, Gif sur Yvette, 30 Nov. 1 et 2 décembre 1992.
 9. J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum, and P. Pillet, « *Transversal magneto-optical compression of a frequency-chirping slowed cesium atomic beam* », OSA Annual Meeting, Toronto, octobre 1993.
 10. J. Yu, K. Giulietti, F. Sourgen, A. Ross, and J.P. Wolf, M. Ferriol, G. Foulon, C. Goutaudier, M.T. Cohen-Adad, and G. Boulon, « *SHG dans un micro-cylindre de $LiNbO_3$* », COLOQ 6, Bordeaux, Septembre 1999.
 11. Jean-Pierre Wolf, Véronique Boutou, Jin Yu, Jérôme Kasparian, Steven C. Hill, Yong-le Pan, Stephan Holler, Richard K. Chang, « *Enhanced backward multi-photon-excited fluorescence from microcavities* », CLEO/QELS, San Francisco, 05/2000.
 12. J. Yu, K. Giulietti, F. Sourgen, A. Ross, and J.P. Wolf, M. Ferriol, G. Foulon, C. Goutaudier, M.T. Cohen-Adad, and G. Boulon, « *SHG dans un micro-cylindre de $LiNbO_3$* », COLOQ 6, Bordeaux, Septembre 2000.

Annexe B

Quelques publications

1. J. Yu, S. Guellati, M.-C. Gagné, A. Clairon and J.-L. Picqué, « *Microwave resonance on a laser-cooled cesium atomic beam: prospects for a cesium frequency standard* », Opt. Commun. **82**, 27 (1991).
2. P. Pillet, C. Valentin, R.-L. Yuan and J. Yu, « *Transfer by adiabatic following in a multilevel system* », Phys. Rev A **48**, 845 (1993).
3. J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum and P. Pillet, « *Funnel with orientated Cs atoms* », Opt. Commun. **112**, 136 (1994).
4. J. Yu, K. Giulietti, F. Surgen, A. Ross, J.P. Wolf, M. Ferriol, G. Foulon, C. Gautaudier, M.T. Cohen-Adad, and G. Boulon, « *Second harmonic generation in a micro-radius LiNbO₃ cylinder with quasi-elliptical cross section* », Opt. Lett. **24**, 394 (1999).
5. Steven C. Hill, Véronique Boutou, Jin Yu, Stephane Ramstein, Jean-Pierre Wolf, Yong-le Pan, Stephan Holler, and Richard K. Chang, « *Enhanced backward-directed multi-photon-excited fluorescence from microcavities* », Phys. Rev. Lett. **85**, 54 (2000).
6. J. Yu, D. Mondelain, G. Ange, R. Volk, S. Niedermeier, and J.P. Wolf, J. Kasparian, R. Sauerbrey, « *Backward supercontinuum emission from a filament generated by ultrashort laser pulses in air* », soumis à Opt. Lett. (octobre 2000).

Microwave resonance on a laser-cooled cesium beam: prospects for a cesium frequency standard

J. Yu, S. Guellati, M.-C. Gagné, A. Clairon¹ and J.-L. Picqué

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S., 91405 Orsay, France

Received 6 November 1990

The atomic clock transition ($F=3, M_F=0 \leftrightarrow F=4, M_F=0$) has been studied on a laser-cooled cesium atomic beam. Diode lasers have been used for laser cooling of the atoms, and for preparation and detection of the microwave transition. Both Rabi spectra and Ramsey fringes have been obtained. The observed lineshapes are characteristic of the narrow velocity distribution of the atoms. The residual width of the velocity distribution was estimated from the observation of Rabi oscillations. The high signal-to-noise ratio of the experimental spectra demonstrate the attractive possibilities opened by laser cooling in spectroscopy and frequency standard applications.

1. Introduction

The atom-radiation interaction induces momentum exchanges between photons and atoms, leading to laser cooling of atomic beams or laser storage of neutral atoms [1]. These techniques open new possibilities in metrology and high resolution spectroscopy [2]. In particular, the application to optical or microwave frequency standards should yield improved performances in the near future [3–5].

In this paper, we present results concerning the observation of the Cs atomic clock transition in a cooled atomic beam. In the first section, we investigate the process of laser cooling by the frequency chirping technique. We point out important factors in the design of a spectroscopic experiment using a cooled atomic beam, with a linear configuration. Then in the second section, we report some observations on the clock transition for different schemes of microwave excitation, such as the one pulse interaction scheme (Rabi resonance), the two successive pulses interaction scheme (Ramsey fringes) and the multiple pulses interaction scheme. Finally, we discuss the results, with a view towards applications to frequency standards and spectroscopy.

2. Frequency chirping laser cooling of an atomic beam

The laser cooling of atoms results from photon absorption–spontaneous emission cycles. Each cycle changes the velocity v of the atoms (mass m) on the average by an amount $\Delta v = h\nu/mc$ in the direction of the incident photons of energy $h\nu$. It is thus possible to slow down atoms by irradiating an atomic beam with a counterpropagating laser beam. Nevertheless, after a number of cooling cycles, the first order Doppler effect shifts the atoms out of resonance. Two methods have been used to compensate this effect: spatially varying a magnetic field (Zeeman tuning cooling) [6] or continuously sweeping the laser frequency (frequency chirping cooling) [7]. The light pressure force, provided by the cooling laser, bunches the atoms around a reduced velocity. The narrowing of the initial velocity distribution is however limited by velocity diffusion, induced by the random character of spontaneous emission.

In our experiment, the frequency chirping cooling technique is used. Each frequency chirping sequence produces a packet of cooled atoms propagating along the interaction axis. Those travelling cooled atoms constitute a potential signal for applications. Fig. 1 illustrates a typical configuration for a spectroscopy experiment using a cold atomic beam. Atoms are first

¹ L.P.T.F., Observatoire de Paris, 75014 Paris, France.

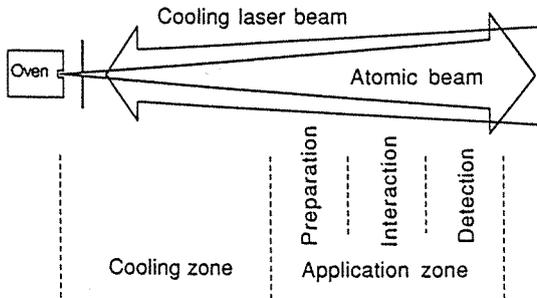


Fig. 1. Experimental configuration for the application of a cooled atomic beam to high resolution spectroscopy.

slowed and cooled in a zone about 1 m in length (the cooling zone) and then travel freely through an application zone. The latter is separated into three regions, respectively referred to as preparation, interaction and detection regions. Such a geometry implies a time sequential experiment. In order to design an optimal experimental chronology, the time evolution of cooled atoms density at the detection zone after each frequency chirping sequence has to be well known.

A simple phenomenological model allows us to determine the evolution of the cooled atoms density with respect to various parameters. This model is essentially based on the conservation of the flux of atoms during the cooling process. It takes into account the spatial divergence of the atomic beam arising from various effects: geometrical collimation, progressive reduction of the longitudinal velocity and transverse diffusion of the atoms by photons. The effect of this diffusion process increases the amplitude of the transverse random motion of the atoms by a quantity σ . The gravitational effect must also be taken into account because it pulls atoms of small velocities out of the apparatus axis. At the detection zone, and for a time delay τ after the end of a frequency chirping sequence, the density n of slowed atoms with velocity v_f is evaluated as follows

$$n(v_f, \tau) = \int_{v_f}^{\sqrt{v_f^2 + 2a(L - v_f\tau)}} \frac{R^2}{(KR + \sigma)^2} \rho(v_i) dv_i, \quad (1)$$

where ρ represents the initial velocity distribution, L is the distance between the oven and the detection zone, v_i is the initial atomic velocity, a is the de-

celeration induced by the cooling laser, and R is the radius of the atomic beam (evaluated at the detection region in the absence of the cooling laser); K is a parameter depending on v_i , v_f , a , L , τ , which accounts for the divergence induced by the beam deceleration.

The theoretical evaluation of n versus τ , for a chosen velocity (50 m/s), is compared with the corresponding experimental curve in fig. 2. The experimental curve is obtained by selectively measuring the fluorescence signal of the cooled atoms irradiated at a fixed frequency by a laser in the detection zone (laser L3B in fig. 3). The decay of the signal is due to the frequency chirping character of the cooling technique and to the limited interaction length. Atoms escaping out of the oven after the beginning of the frequency chirp cannot undergo the entire cooling process. Consequently, at the end of the chirping sequence, the cooled atom density decreases as one gets closer to the oven. Good agreement is found between the calculated and experimental data, which indicates that the assumptions underlying the phenomenological model are reasonable. Such an analysis of the signal behaviour has permitted us to determine the time sequence for the production and utilization of cooled atoms in the experiment.

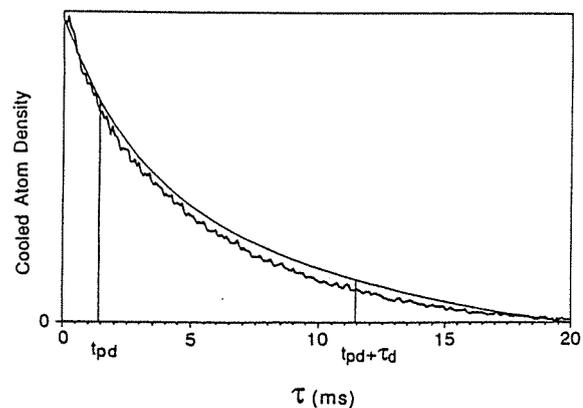


Fig. 2. Time evolution of the cooled atom density at the detection zone (measured by laser-induced fluorescence) after a chirping sequence. The velocity of the beam is 50 m/s. A theoretical fit is also shown. From the end of a cooling chirp, the atoms arrive at the detection zone at time t_{pd} and they are detected over a period τ_d . The potential signal in a spectroscopic experiment is proportional to the area under the curve between times t_{pd} and $t_{pd} + \tau_d$.

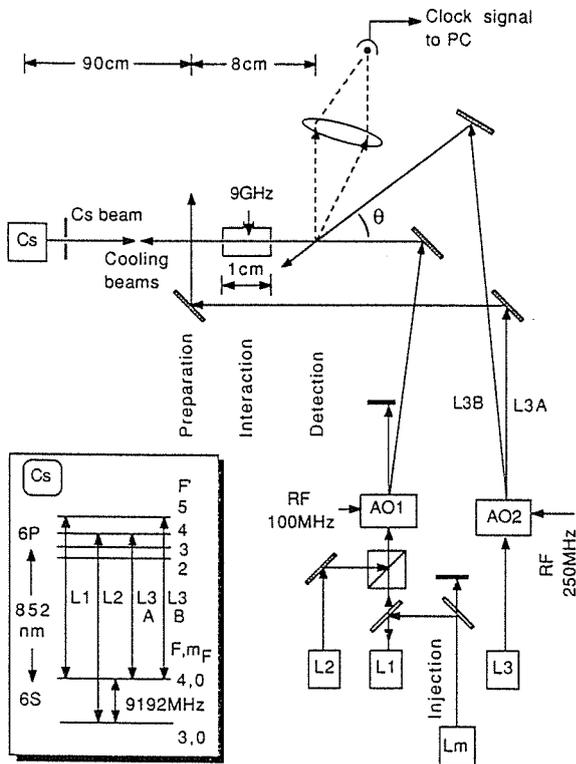


Fig. 3. Schematics of the experimental set-up and diagram of the relevant energy levels in cesium.

3. Observation of the cesium clock transition

We describe now the application of a laser cooled atomic beam to the observation of the Cs atomic clock transition. Fig. 3 shows a schematics of the experimental set-up. The principle of the experiment is the following. The cesium atoms travel successively through a cooling section and an atomic clock section. In a first step (cooling period), the atomic beam interacts with the beams of two counterpropagating lasers (L1, L2). The cooling laser (L1) is tuned to the $6^2S_{1/2} F=4 \leftrightarrow 6^2P_{3/2} F'=5$ transition. At the same time, the atoms are continuously transferred from the hyperfine level $6^2S_{1/2} F=3$ of the ground state to the other one, $6^2S_{1/2} F=4$, by a pumping laser (L2) tuned to the transition $6^2S_{1/2} F=3 \leftrightarrow 6^2P_{3/2} F'=4$. We emphasize here that spectrally narrowed lasers produce a narrower velocity distribution and a more intense cold atom beam than free running lasers [8]. In a second step, we realize

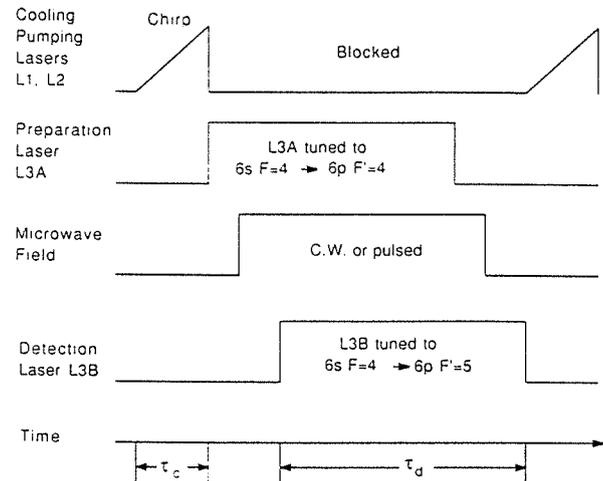


Fig. 4. Time sequence of the experiment. The packet of cold atoms (cooled during τ_c) undergo successive interactions with the preparation laser, the microwave field and the detection laser (during τ_d) as travelling forward the apparatus. Then, the microwave frequency is incremented and the sequence repeated.

an optically pumped cesium clock [9] working on cold atoms. The cooled atoms are transferred from the state $6^2S_{1/2} F=4$ to the $6^2S_{1/2} F=3$ state by optical pumping on the transition $6^2S_{1/2} F=4 \leftrightarrow 6^2P_{3/2} F'=4$ (laser L3A in fig. 3: preparation region). The cooled atoms then cross a microwave cavity in resonance with the cesium clock transition $6^2S_{1/2} F=3, M_F=0 \leftrightarrow 6^2S_{1/2} F=4, M_F=0$ (interaction region). Finally, the atoms in the $6^2S_{1/2} F=4$ state are selectively detected by measuring the fluorescence induced by laser excitation on the $6^2S_{1/2} F=4 \leftrightarrow 6^2P_{3/2} F'=5$ transition (laser L3B in fig. 3: detection region). The time sequence of our experiment is shown in fig. 4.

3.1. Experimental set-up

The cooling laser is a 30 mW power cw single-mode STC diode (L1 in fig. 3). It is locked to a low power single-mode diode laser (Hitachi-HLP1400) by optical injection. This master laser (Lm in fig. 3) is stabilized to an external confocal Fabry-Perot cavity by optical feedback [10]. The intrinsic linewidth of the cooling laser is then less than 100 kHz. By sweeping up the master laser frequency and thus, the cooling laser frequency, the Doppler shift of decelerating

atoms is compensated. The sweeping range, typically 350 MHz, is determined by the atom-light interaction length (≈ 1 m), and the sweep duration which optimizes the cooling process is typically 7 ms. The stability of the final velocity, chirp after chirp, depends on the reproducibility of the frequency scanning. The starting frequency of each chirp is offset locked to one of the saturated absorption lines (hyperfine lines or cross-over lines) in a cesium cell in order to insure that all chirps start at the same frequency. This servoloop insures a reproducibility of the frequency chirp to within 1 MHz, which yields a final velocity stability of about ± 1 m/s. The pumping laser (L2 in fig. 3), which is simply swept by the application of a current ramp, has a spectral width of about 20 MHz. The beams of the cooling and the pumping lasers are combined on a polarizing prism and fed through the Cs beam tube via an acousto-optic device (A.O.1 in fig. 3), acting as a switch. At the entrance window, the cooling beam is typically 1 cm diameter and 10 mW power; the pumping laser has to be at least the same diameter and more than 1.5 mW power.

The clock experiment is achieved by setting a microwave cavity (resonating at 9192 MHz) in the interaction zone of fig. 1. This cavity provides an interaction length of 1 cm. Three pairs of Helmholtz coils surround the cavity, in order to compensate the earth's magnetic field. One of these produces a bias static field (≈ 400 mG) in order to separate the Zeeman components of the hyperfine transition. The bias field is chosen parallel to the microwave magnetic field so as to excite the $F=3, M_F=0 \leftrightarrow F=4, M_F=0$ clock transition. Upstream and downstream from the cavity, the slowed atoms cross the pumping laser beam (L3A) and the probe laser beam (L3B). Those two beams, detuned by ν_{AO} by the interposition of an acousto-optic modulator (A.O.2 in fig. 3), stem from a single diode laser. This laser (Hitachi-HPL1400) is stabilized by optical feedback and locked to the hyperfine line $6^2S_{1/2} F=4 \leftrightarrow 6^2P_{3/2} F'=4$ (frequency ν_{4-4}) in a cesium cell. The resulting linewidth is thus less than 100 kHz. Due to the optical pumping by L3A, about 10% of the slowed atoms are sent to the $F=3, m_F=0$ Zeeman sublevel, and thus can be transferred to the $F=4, m_F=0$ level by the microwave field. The probe beam, crossing the cold atoms at an angle θ , is tuned to resonance with the

transition $6^2S_{1/2} F=4 \leftrightarrow 6^2P_{3/2} F'=5$ (frequency ν_{4-5}). The following condition is realized:

$$\nu_{4-4} + \nu_{AO} + (\nu_f/c) \cos \theta = \nu_{4-5}, \quad (2)$$

ν_{AO} being the acousto-optic driving frequency and ν_f the velocity of cold atoms. Thanks to this arrangement, the $6^2S_{1/2} F=3, M_F=0 \leftrightarrow 6^2S_{1/2} F=4, M_F=0$ clock transition is detected on a dark background. Moreover, only the atoms of velocity ν_f are seen; the high velocity tail, typical of a frequency chirped laser cooled atomic beam, is ignored. Fluorescence photons are collected by a focusing optics, which provide a detection solid angle of $\pi/4$ steradians.

At the end of each cooling process, the laser beams L1 and L2 are switched off by the acousto-optic switch A.O.1. The microwave interrogation thus takes place without light shift due to the cooling lasers. The microwave field can be applied continuously or can be pulsed. In the former case (Rabi resonance), the cooled atoms (velocity ν_f) undergo a single interaction of time duration $\tau_i = l_c/\nu_f$, corresponding to their transit time inside the cavity (length l_c). The resonance line shape is of Rabi type, with fwhm $\Delta\nu = 0.79/\tau_i$ for a monokinetic beam [2,11]. In the latter case, the cooled atoms undergo several successive interactions. The transition line resulting from the interference of those interactions, presents sinusoidal oscillations (fringes) with a Rabi shape envelope. For Ramsey resonance (two pulses for each atom), the pulse duration τ_{on} and spacing τ_{off} are chosen to meet the following condition

$$\tau_{on} + \tau_{off} = \tau_i/2, \quad (3)$$

in order to insure that all atoms interact with two microwave pulses during their transit in the cavity. We note that this condition is velocity selective and is thus verified only by the atoms having the chosen final velocity. The fwhm of the fringes is $\Delta\nu = 0.5/\tau_{off}$ [2,11]. Condition (3) can be generalized to n pulses interaction:

$$\tau_{on} + \tau_{off} = \tau_i/n, \quad (4)$$

which insures that all atoms interact with n microwave pulses during their transit in the cavity. For $n \geq 3$, the number of fringes decreases as n increases, due to some additional interferences. For example, the spectrum obtained with 4 pulses presents only

one fringe over two compared to the number of fringes obtained with 2 pulses.

A detection window is opened with delay and duration adapted to the final velocity of the atoms. The typical duration of the entire cycle, "cooling period-microwave interaction", is 20 ms. After each cycle, the resonance signal is stored, the microwave frequency is incremented, and the sequence is repeated.

3.2. Results and discussion

The clock transition was observed with a cooled atomic beam of velocity 50 m/s, for which the transit time in the cavity is 200 μ s. An example of the spectrum, obtained when a microwave field is continu-

ously applied (one π pulse of duration 200 μ s for each atom), is shown in fig. 5a (Rabi spectrum). This spectrum is an average of 10 sweeps of ± 10 kHz amplitude around the central frequency. The observed pattern presents a central peak with two lateral lobes, as predicted by theory [11]. Ramsey fringes are shown in fig. 5b for two $\pi/2$ microwave pulses (duration $\tau_{\text{on}}=8$ μ s) separated by $\tau_{\text{off}}=92$ μ s. This spectrum is an average of 20 sweeps of ± 100 kHz around the central frequency. The lineshape appears as a Rabi envelope (whose width depends on the pulse microwave duration, τ_{on}) on which fringes are superimposed. Fig. 5c shows the resonance line obtained for the case where all cooled atoms undergo 4 microwave interactions (duration $\tau_{\text{on}}=8$ μ s, sep-

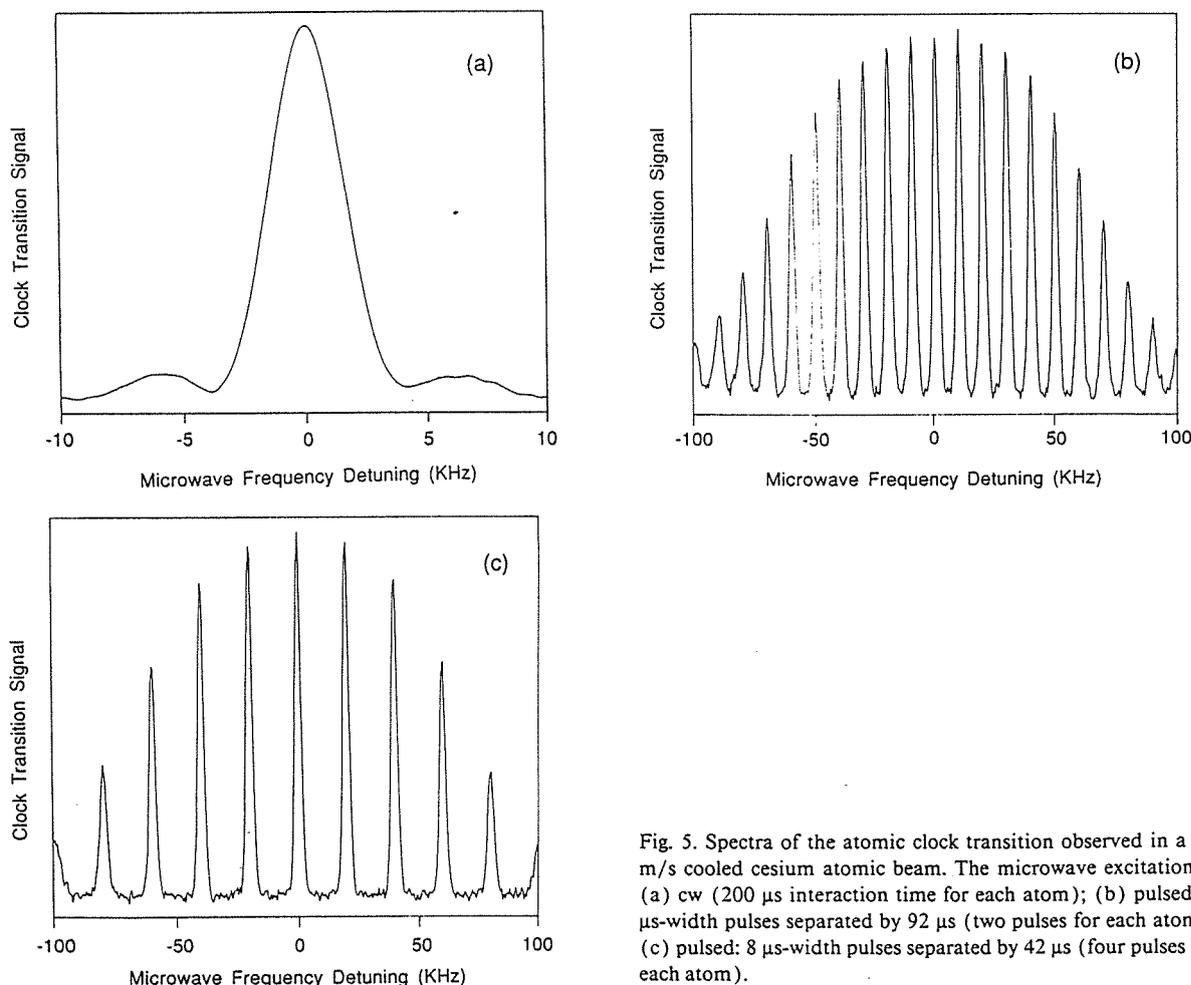


Fig. 5. Spectra of the atomic clock transition observed in a 50 m/s cooled cesium atomic beam. The microwave excitation is (a) cw (200 μ s interaction time for each atom); (b) pulsed: 8 μ s-width pulses separated by 92 μ s (two pulses for each atom); (c) pulsed: 8 μ s-width pulses separated by 42 μ s (four pulses for each atom).

arated by $\tau_{\text{off}}=42 \mu\text{s}$) during their transit in the cavity. By comparing this spectrum to that of fig. 5b, one sees only half the totality of the main fringes. For figs. 5a, b, c, each sweep represents 400 data acquisitions. The total acquisition time per data point is 16 ms, consisting of a 8 ms signal storage time plus a 7 ms cooling time plus a 1 ms delay time between cooling and signal detection.

All these spectra confirm the quasi-monokinetic character of the cooled atomic beam. We estimated the residual width of the velocity distribution using an original method, based on the observation of Rabi oscillations. These oscillations of the transition probability were obtained by setting the frequency of the microwave field at the center of the resonance and varying the microwave magnetic field amplitude. Fig. 6 shows an experimental recording of the Rabi oscillations along with a theoretical fit (smooth line). The decrease in the Rabi oscillation amplitude results both from the inhomogeneity of the microwave field on the atomic beam section and the velocity distribution of the cooled atomic beam. By deconvolution, the fwhm of the latter is estimated to be less than 5 m/s (corresponding to a temperature of 72 mK). A rigorous evaluation of the fwhm is rather difficult because of the contribution of the microwave field inhomogeneity. The temperature obtained by this method is superior to the Doppler limit.

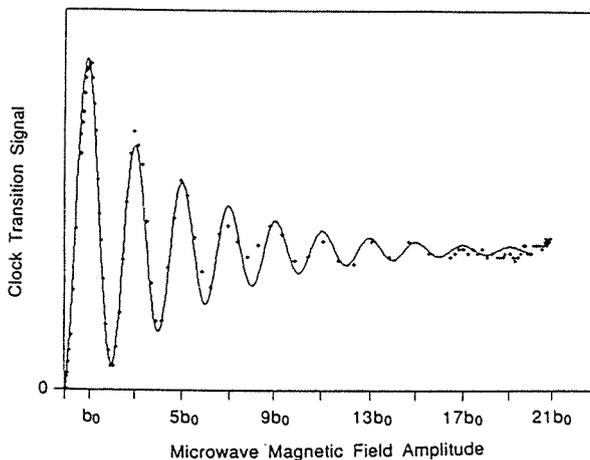


Fig. 6. Atomic clock signal versus microwave magnetic field amplitude, measured at the central frequency of the line (Rabi oscillations). The horizontal axis is graduated in b_0 units, where b_0 is the amplitude of the microwave magnetic field corresponding to a π -pulse for the atomic velocity 50 m/s.

It should be essentially limited by the inhomogeneity of the laser beam intensities over the atomic beam section.

The fact of studying the microwave resonance on such a "monokinetic" beam has permitted us to observe several Rabi lateral lobes and the totality of the Ramsey fringes, which is not achievable if a thermal beam is used. Contrary to the theoretical prediction, it can be observed (figs. 5b and 5c) that the fringes are not perfectly sinusoidal. Moreover, the experimental linewidths are a bit narrower than the expected widths (10% narrower for the Rabi line and 16% for the Ramsey fringes). These anomalies can be explained by microwave leakage outside the cavity through the atomic beam passage holes. For the Rabi interaction, the effective atom-microwave interaction length is thus slightly longer than the cavity length and, for the multi-pulses interaction, the effective number of pulses is thus larger than expected. Indeed, by accounting for these effects in the calculation of the spectra, we could obtain excellent agreement with experiment. A comparison between experiment and theory is shown in fig. 7, for the case of Ramsey fringes.

Finally, the signal-to-noise ratio of our spectra is larger than 20 for an averaging over 4 sweeps (total integration time per data point of 4×16 ms), which is satisfying for a preliminary experiment. We think that the S/N ratio is essentially limited by the fluctuation

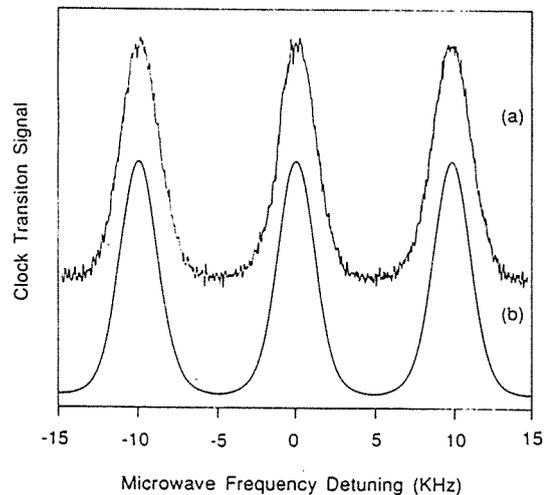


Fig. 7. Central part of the Ramsey spectrum, obtained for two-pulses interaction ($8 \mu\text{s}$ pulses separated by $92 \mu\text{s}$) in a 50 m/s beam: (a) experimental spectrum; (b) calculated spectrum.

tuation of the cooled atomic beam intensity. By further improving the spectral quality of both the cooling and pumping lasers, and also by improving the stability of their frequency chirping ranges, we can reduce this fluctuation. Moreover, with additional improvements such as increasing the total solid angle of the detection and using a more sophisticated pumping scheme (with two lasers), in order to optically pump all the atoms to the $F=3$, $M_F=0$ sub-level we believe that the S/N ratio could easily be increased by 1 or 2 orders of magnitude.

For lower velocities, the clock transition signal falls off rapidly. For example, we observed that with a 20 m/s beam, in the same experimental conditions, the signal-to-noise ratio was reduced to 4. This is due to the transverse diffusion of the atoms, becoming important when the longitudinal velocity is comparable with the transverse velocity, and to the effect of gravitation, pulling the slow beam out of the detection zone. To maintain a reasonable signal-to-noise ratio, we estimate that the lowest velocity that can be used in a linear configuration experiment is around 10 m/s. The longest interaction time for a 1 cm interaction zone is thus of the order of 1 ms. To obtain ultra-long interaction times, it would be necessary to replace the linear geometry by more elaborate ones, such as three dimensional molasses [3] or atomic fountain [4]. This would be worthwhile only in atomic systems having a correspondingly long lifetime (microwave transitions, for example). Nevertheless, for atomic systems having a lifetime less than 1 ms (e.g. transitions between Rydberg states), the linear configuration is appropriate.

4. Conclusion

We have set an experiment which consists of observing the atomic clock transition on line with a diode laser cooled cesium beam. By measuring the time evolution of the cooled atoms, we have designed an optimized time sequence for this type of experiment. Microwave spectra, obtained with a 50 m/s cooled beam, and for different excitation schemes (single and multi-pulses interaction), were

observed with a good signal-to-noise ratio (> 20). The resolution of several Rabi lateral lobes and the observation of the totality of the Ramsey fringes is characteristic of a narrow velocity distribution of the atoms. The spectra are in excellent agreement with calculations which take into account the microwave leakage out of the cavity. The residual velocity distribution width of cooled atoms was estimated by measuring the decrease in the amplitude of Rabi oscillations. It is estimated to be less than 5 m/s, corresponding to a temperature of 72 mK. The simple linear experimental configuration of our experiment seems well appropriate for atomic systems having lifetime durations of less than 1 ms.

Acknowledgements

This work was partially supported by Bureau National de Métrologie (BNM). One of the authors (M.-C.G.) wishes to thank the Fonds pour la Formation de Chercheurs et l'Aide à la recherche (FCAR) and the Prêt d'Honneur de la Société St-Jean Baptiste du Québec for postdoctoral fellowships.

References

- [1] For a review of this field, see the special issues on the Mechanical effects of light, *J. Opt. Soc. Am. B* 2, No. 11 (1985), and 6, No. 11 (1989).
- [2] J.L. Picqué, A. Clairon, J. Yu and S. Guellati, *Ann. Phys. C1*, 15 (1990) 31.
- [3] D.W. Sesko and C.E. Wieman, *Optics Lett.* 14 (1989) 269.
- [4] M.A. Kasevich, E. Riis and S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* 63 (1989) 612.
- [5] J.L. Hall, M. Zhu and P. Buch, *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989) 2194.
- [6] W.D. Phillips and H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* 48 (1982) 596.
- [7] W. Ertmer, R. Blatt, J.L. Hall and M. Zhu, *Phys. Rev. Lett.* 54 (1985) 996.
- [8] C. Salomon and J. Dalibard, *C.R.A.S.* 306 (1989) 1319.
- [9] M. Arditi and J.L. Picqué, *J. Phys. Lett.* 41 (1980) L379.
- [10] Ph. Laurent, A. Clairon and Ch. Bréant, *IEEE J. Quant. Electron.* 25 (1989) 1131.
- [11] N.F. Ramsey, *Molecular beams* (Oxford Univ. Press, London, 1956).

Adiabatic population transfer in a multilevel system

P. Pillet, C. Valentin, R.-L. Yuan,* and J. Yu

Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, Campus d'Orsay, Bâtiment 505, 91405 Orsay CEDEX, France

(Received 18 August 1992)

We report an experimental observation of coherent population transfer in a multilevel system by adiabatic following through a trapped state. Raman transitions between ground-state sublevels are induced by two partially overlapping σ^\pm polarized laser beams, tuned to the hyperfine transition $F=4 \rightarrow F'=4$ of the cesium D_2 line. An efficiency of more than 50% is observed for the $m_F = +4 \rightarrow m_F = -4$ population transfer. The influence of other excited hyperfine levels on the transfer efficiency is pointed out. The feasibility of the technique with counterpropagating laser beams is also demonstrated.

PACS number(s): 42.50.Vk, 32.80.Pj, 03.65.-w

Stimulated by new developments in laser cooling and manipulation of neutral atoms, atomic interferometry becomes currently a focus of research in atomic physics [1-4]. The realization of elements, such as lenses, mirrors, and especially beam splitters for atoms is obviously the key point for atomic interferometers and their applications. Elementary recoils in atom-laser interactions are used to split coherently an atomic beam into the two arms of a Mach-Zehnder interferometer [11]. Atomic interferometers have been built in the optical Ramsey-excitation geometry [2] and in the stimulated Raman transition scheme [3]. Atomic recoils in a standing wave (Kapitza-Dirac effect [5] and Bragg scattering [6]) present also attractive possibilities, although a large laser detuning is necessary to avoid any spontaneous emission. More recently, a novel process has been proposed to coherently deflect or split an incident atomic beam by a momentum transfer with adiabatic following in a multi-Zeeman-level system [7]. Such a transfer consists of maintaining the atomic system in a trapped state resulting from the Raman processes induced by two counterpropagating and partially overlapping σ^\pm polarized laser fields. The nonabsorbing property of the trapped states allows the laser fields to operate on the atomic resonance without populating the excited state.

For a three-level Λ system ($|g_-\rangle$, $|g_+\rangle$, and $|e\rangle$), in the presence of σ^\pm polarized laser fields, a nonabsorbing (NA) coherent superposition of the two ground states ($|g_-\rangle$ and $|g_+\rangle$) or trapped state can be built easily [7-9]:

$$|NA\rangle = (\Omega_-/\Omega)|g_-\rangle - (\Omega_+/\Omega)|g_+\rangle,$$

where Ω_\pm represents the Rabi frequency of the σ^\pm polarized laser field and $\Omega = (\Omega_+^2 + \Omega_-^2)^{1/2}$. Let us assume two σ^\pm laser pulses, time-delayed and partially overlapped (σ^+ beam precedes the σ^- one, for instance). An atom initially prepared in $|g_+\rangle$ can be regarded as trapped in $|NA\rangle$ ($\Omega_- = 0$). As the σ^- component increases, the trapped state evolves with the change of the polarization. If the adiabatic condition is fulfilled, i.e., $\tau \gg \Omega_\pm^{-1}$ [τ is characterized by the full width at half maximum

(FWHM) of the laser pulse duration], the atom will stay in the trapped state without any transition towards excited states and so without any spontaneous emission. At $t = +\infty$, the trapped state is switched to the $|g_-\rangle$ state ($\Omega_+ = 0$). The atomic population is so coherently transferred from $|g_+\rangle$ to $|g_-\rangle$. In the counterpropagating configuration, two elementary photon momenta $2\hbar k$ are also transferred to each atom [7]. The coherent population transfer has been demonstrated in a three-level Λ system in the Na_2 molecule [10] and discussed theoretically by several authors [11].

The rapid adiabatic following condition in NMR for a nonfree spin is given by $T_R \gg \tau' \gg \Omega_L^{-1}$, where τ' is the magnetic field variation time scale, Ω_L the Larmor precession frequency, and T_R the shortest relaxation time of the atomic internal coherence. In the optical domain, the generalization of such a process to a Bloch vector is straightforward. However, the optical coherence damping time is in general very short and imposes the use of very short laser pulses with very high peak power. The merit of the proposed method is actually to use trapped states with infinitively long relaxation time T_R .

In this Brief Report we present the experimental demonstration of the coherent population transfer in a multilevel system with adiabatic following in Raman processes induced by partially overlapping σ^\pm laser fields. The adiabatic transfer occurs among the Zeeman components from $m_F = +4$ to $m_F = -4$ of the cesium ground hyperfine level $F=4$. Two features are presented in our experiments. First, the three-level Λ system is generalized to a $j \rightarrow j$ atomic transition, for which it is also possible to build nonabsorbing states. In such a system a $2j\hbar k$ -momentum transfer can be expected in a counterpropagating laser configuration. We have considered the hyperfine transition $F=4 \rightarrow F'=4$ of the cesium D_2 line ($6s^2S_{1/2} \rightarrow 6p^2P_{3/2}$, $\lambda = 852.1$ nm). Second, the trapped state is no longer totally isolated in the presence of other hyperfine levels ($F'=3$ and 5) in the Cs excited state $6p_{3/2}$ and therefore presents a finite relaxation lifetime T_R . This effect has important influences on both the adiabatically criterion and the transfer efficiency. This point should be crucial for a large coherent deviation of an

atomic beam using a multipassage configuration.

Our experimental setup is shown in Fig. 1. A detailed description of atomic beam and lasers can be found elsewhere [12]. The atoms escape from an oven ($\sim 120^\circ\text{C}$) through a vertical $100\text{-}\mu\text{m}$ -wide slit. Five laser beams, denoted, respectively, as L_P , L_{T+} , L_{T-} , L_A , and L_D , cross the thermal atomic beam perpendicularly. L_P is provided by a feedback-stabilized Hitachi laser diode, frequency locked to the saturated absorption $F=4 \rightarrow F'=5$ of the cesium D_2 line. L_P is σ^+ polarized and illuminates the atomic beam 120 mm away from the oven. The atomic population initially in a statistical mixing of the nine Zeeman components of the $F=4$ ground hyperfine level is optically pumped into the $m_F=+4$ Zeeman level. Then the atoms cross the transfer zone (Z_1), located at about 10 mm downstream. This zone consists of two $L_{T\pm}$ beams σ^\pm polarized, tuned to the hyperfine resonance $F=4 \rightarrow F'=4$. For studying the coherent population transfer, we consider first L_{T+} and L_{T-} propagating in the same direction. If L_{T+} precedes L_{T-} with partial overlapping between them, the atoms are transferred from the initial trapped state $m_F=+4$ corresponding to the σ^+ polarization to the final trapped state $m_F=-4$ corresponding to the σ^- one, without exciting the sub-levels of the $F'=4$ hyperfine level during the whole process. The temporal as well as the spatial coherence of the two transfer beams are very important to maintain the Raman coherence during the process. The two laser beams $L_{T\pm}$ are splitted through a dual-beam polarizer (Rochon polarizer) from a single laser beam provided from a STC 50-mW laser diode, which is stabilized by optical injection from a feedback-stabilized Hitachi laser diode. The resulting linewidth is about 50 kHz . The two separated beams are superimposed again through a beam splitter prism cube, which is mounted on a microdisplacement stage providing a transverse displacement of L_{T+} relative to L_{T-} with a resolution better than $50\text{ }\mu\text{m}$. A 100-mm -long Cs cell is used to improve the spatial homogeneity of the laser beams and to reduce the diffused light by spatially resolved saturated absorption. A cylindrical telescope is used to focus $L_{T\pm}$ on slit-shaped spots [width Δ (FWHM) of $\sim 500\text{ }\mu\text{m}$ and height (FWHM) of $\sim 2\text{ mm}$] in the interaction zone Z_1 . The total powers of L_{T+} and L_{T-} used in our experiments are typically 1.2 and 0.65 mW , respectively, which optimize the transfer efficiency for the given focalization of the laser beams. These nonidentical values obtained experimentally are explained by the nonsymmetrical shape of the laser pulses. Mean saturation parameters are evalu-

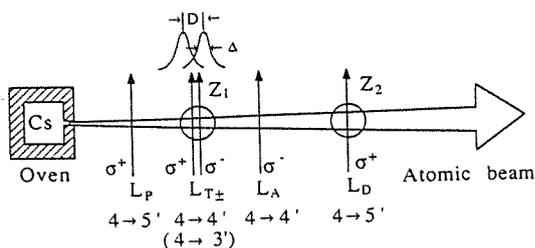


FIG. 1. Experimental setup.

ated to be $s_+ = 109$ and $s_- = 59$, corresponding to the mean Rabi frequencies $\Omega_+ = 2\pi \times 39\text{ MHz} = 7.47\Gamma$ and $\Omega_- = 2\pi \times 29\text{ MHz} = 5.56\Gamma$ ($\Gamma = 2\pi \times 5.22\text{ MHz}$ for the Cs D_2 line). For our thermal atomic beam ($\langle v \rangle \sim 280\text{ m/s}$) the interaction duration is in the order of $\tau = \Delta/v \sim 1.8\text{ }\mu\text{s} \gg 2\pi\Omega_\pm^{-1}$. The adiabatic condition is therefore well fulfilled.

The $m_F = -4$ population is analyzed by the L_A and L_D beams. The analyzing laser beam L_A has the same frequency and polarization as L_{T-} . It crosses the atomic beam about 10 mm away from the transfer zone. Its role is to destroy the atomic populations in all of the Zeeman components of the $F=4$ hyperfine level except that in the $m_F = -4$ sublevel. The presence of the L_A beam does not affect the adiabatic transfer signal. In the absence of adiabatic transfer, it is responsible for a small residual signal (see further), corresponding to the optical pumping of a few atoms in the $F=4$ and $m_F = -4$ level. A free-running Hitachi laser diode provides the detection laser beam L_D to measure the population in the $m_F = -4$ sublevel 50 mm downstream (Z_2). Its frequency is swept across the $F=4 \rightarrow F'=5$ transition. Another detection is available over the transfer zone (Z_1) through the use of a charge coupled device (CCD) camera, giving a spatial resolution of the fluorescence induced by L_{T+} and L_{T-} .

The Earth's magnetic field is compensated for by three pairs of Helmholtz coils. A small homogeneous magnetic field ($\sim 100\text{ mG}$) is applied along the laser beam propagation direction to dominate residual external fields and to stabilize the polarized atomic population. The Zeeman shift induced by this field is negligible ($\sim 35\text{ kHz}$) compared to the linewidth of the Raman transition, given by the atomic beam transit time through the overlapping zone between L_{T+} and L_{T-} , $\Delta\nu \sim 1\text{ MHz}$.

The curve S_2 in Fig. 2 shows the population transfer efficiency measured in the case of the $F=4 \rightarrow F'=4$ transition as a function of the displacement D , between the axes of L_{T+} and L_{T-} . D is measured in units of Δ and

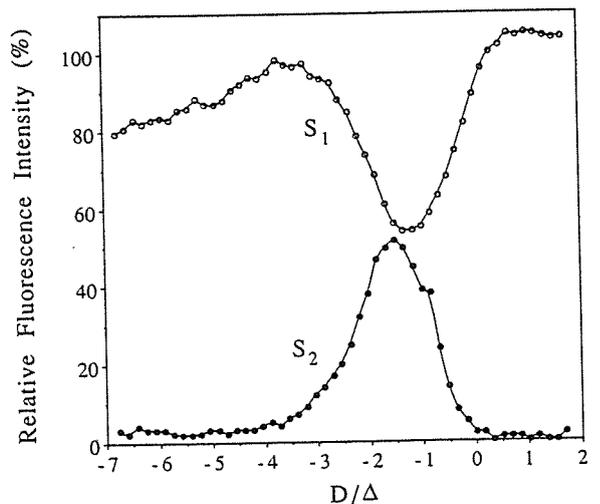


FIG. 2. The transfer efficiency (curve S_2) and the partial extinction of the L_{T-} -induced fluorescence (curve S_1) as a function of the displacement D of L_{T+} , in the case of the $F=4 \rightarrow F'=4$ transition.

its negative values correspond to the case where L_{T+} precedes L_{T-} . The transfer efficiency is given by the ratio of the measured fluorescence intensity to the total fluorescence obtained when L_{T+} , L_{T-} , and L_A are cut off. The polarization of the L_D beam is σ^+ . The choice of this configuration does not affect significantly the fluorescence signal (compared, for instance, to σ^- polarization). The residual fluorescence in the absence of L_{T+} and L_{T-} (L_A on) is measured to be about 4% of the total fluorescence. The video signal from Z_1 is analyzed at the same time, giving the variation of the fluorescence intensity induced by L_{T-} as a function of D . The intensity is divided by the total fluorescence induced by L_{T-} in the absence of L_{T+} (S_1 in Fig. 2). A maximum transfer efficiency of 52% is obtained for $D \sim -1.5\Delta$. The partial extinction of the L_{T-} -induced fluorescence ($\sim 50\%$) correlates with the population transfer, indicating the coherent character of the process. As the transfer beam is detuned out of the resonance, the process is less efficient. For a detuning of 8Γ , the transfer efficiency decreases to half of that at the resonance.

To interpret our results, theoretical simulations have been carried out for the $F=4 \rightarrow F'=4$ transition in the cesium atom. The laser pulses used in the simulations are assumed to be of Gaussian form, with Rabi frequencies fitting approximatively our experimental conditions in the overlapping laser zone. The wave-function formalism is used in our calculations, in which the spontaneous emission from the excited states is taken into account by giving an imaginary part in the excited-state energies. An atom is considered to be lost from the coherent transfer process as soon as it emits a spontaneous photon. The theoretical results are given in Fig. 3. A maximum transfer efficiency of 90% is evaluated. The generalization of the present nine-level system from the three level Λ system does not reduce significantly the transfer efficiency, in the conditions of our experiment. As pointed out above, the $F'=4$ is not the only excited state. We

have to consider the three hyperfine levels $F'=5, 4$, and 3 in the transfer process (the hyperfine splittings are 251 and 201 MHz, respectively). A calculation including them shows that the maximum transfer efficiency decreases to 55% (Fig. 3, curve *b*), in agreement with our experimental observations. The presence of spurious hyperfine levels is therefore an important source of leaks in the coherent transfer process. For the purpose of finding a more isolated trapped state, the cesium atom is, among the alkaline atoms, the best candidate with relatively large hyperfine splittings. Furthermore the D_1 line, with a 1167 MHz hyperfine splitting in the excited state, should provide a more ideal trapped state. A theoretical calculation gives us a maximum efficiency of 90% for the $F=4 \rightarrow F'=4$ transition of the D_1 line. The influence of the other hyperfine level ($F'=3$) is negligible in this case.

The same experiment has also been performed for the $F=4 \rightarrow F'=3$ transition of the D_2 line. We do not observe more than 15–20% transfer efficiency. For such a transition, the adiabaticity condition is more difficult to fulfill because of the strong asymmetry in the Clebsch-Gordan coefficients.

Finally, we have studied the counterpropagating $L_{T\pm}$ configuration. The direct observation of the coherent momentum transfer must be done preferably in a highly collimated atomic beam or in an atomic fountain. The expected $8\hbar k$ -momentum transfer represents a velocity of 28 mm/s for cesium atoms, which results in a deviation angle smaller than 10^{-4} rad for a thermal beam. The transversal velocity Doppler effect shifts atoms out of the Raman transition resonance and only the atoms with the near-zero transversal velocity will be efficiently transferred. In our experiments, we observe a dark line on the L_{T-} -induced fluorescence centered along the propagating axis of the atomic beam, when L_{T+} is displaced to partially overlap L_{T-} ($D \sim -1.5\Delta$) (Fig. 4). The width (FWHM) of the dark line is about $50 \mu\text{m}$. The corresponding transversal velocities ± 0.45 m/s induce

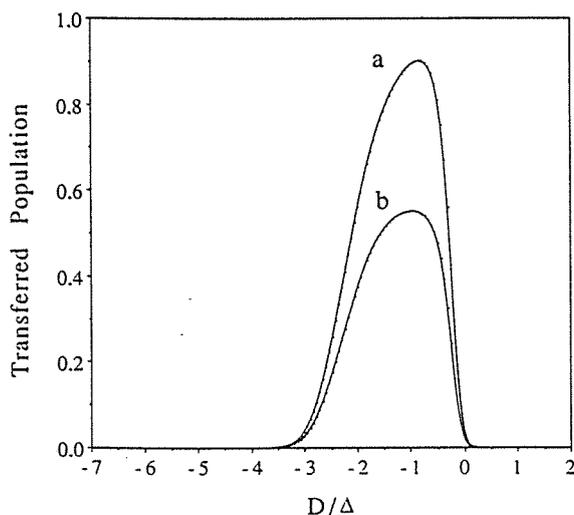


FIG. 3. Theoretically calculated transfer efficiencies as a function of D for $F=4 \rightarrow F'=4$ transition. (Curve *a*) Without consideration of other hyperfine levels. (Curve *b*) With consideration of other hyperfine levels, $F'=5$ and $F'=3$.

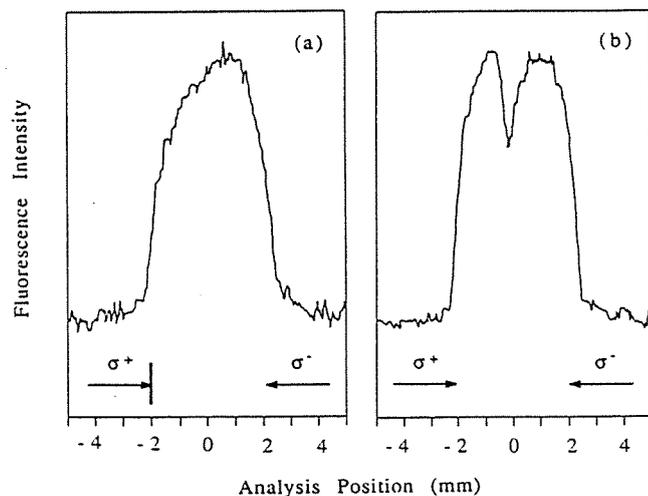


FIG. 4. Profile of the L_{T-} -induced fluorescence in the laser propagation direction. (a) With L_{T-} only; (b) with counterpropagating L_{T+} and L_{T-} ($D \sim -1.5\Delta$)

Doppler shifts $\pm 2 \times 530$ kHz, which is necessary to push atoms out of the Raman resonance ($\Delta\nu \sim 1$ MHz). The observation of the transfer signal in Z_2 cannot be done with a signal-to-noise ratio sufficiently well in this configuration. The zero-velocity transferred atoms have also received a $8\hbar k$ -momentum transfer; even this is not directly measured.

In conclusion, the coherent population transfer has been observed in a multilevel system with an efficiency of more than 50% in the case of the $F=4 \rightarrow F'=4$ transition. Such an efficiency is limited by the presence of other hyperfine levels. The use of the D_1 line should improve the transfer process, allowing large momentum transfers efficiency in a multipassage configuration. The coherent transfer process can also be generalized to other

laser-polarization configurations. An example is given by orthogonal linear polarizations, $\pi_x \perp \pi_y$, where an atomic population initially prepared in the $|m_F=0\rangle_x$ state will be adiabatically transferred into the $|m_F=0\rangle_y$ state. However, the $\sigma^+ - \sigma^-$ configuration remains the most suitable one in the applications to atomic optics and interferometry with the realization of atomic mirrors and beam splitters as pointed out in Ref. [7] and opens large and novel perspectives in these fields.

The authors wish to thank A. Aspect, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and J. von Zanthier for stimulating and helpful discussions. The Laboratoire Aimé Cotton is associated with the Université Paris-Sud.

*Permanent address: Department of Physics, Beijing Normal University, Beijing, China.

- [1] Ch. J. Bordé, Phys. Lett. A **140**, 10 (1989).
- [2] F. Riehle, Th. Kisters, A. Witte, J. Helmcke, and Ch. J. Bordé, Phys. Rev. Lett. **67**, 177 (1991).
- [3] M. Kasevich and S. Chu, Phys. Rev. Lett. **67**, 181 (1991).
- [4] O. Carnal and J. Mlynek, Phys. Rev. Lett. **66**, 2689 (1991); D. W. Keith, C. R. Ekstrom, Q. A. Turchette, and D. E. Pritchard, *ibid.* **66**, 2693 (1991).
- [5] P. L. Gould, G. A. Ruff, and D. E. Pritchard, Phys. Rev. Lett. **56**, 827 (1986).
- [6] P. J. Martin, B. G. Oldaker, A. H. Miklich, and D. E. Pritchard, Phys. Rev. Lett. **60**, 515 (1988).
- [7] P. Marte, P. Zoller, and J. L. Hall, Phys. Rev. A **44**, 4118 (1991); a detailed analysis of this process has been exposed by C. Cohen-Tannoudji during his teaching at Collège de France, Paris (unpublished).
- [8] E. Arimondo and G. Orriols, Lett. Nuovo Cimento **17**, 333 (1976).
- [9] A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji, Phys. Rev. Lett. **61**, 826 (1988).
- [10] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, and K. Bergmann, J. Chem. Phys. **92**, 5363 (1990).
- [11] J. Oreg, F. T. Hioe, and J. H. Eberly, Phys. Rev. A **29**, 690 (1984); J. R. Kuklinski, U. Gaubatz, F. T. Hioe, and K. Bergmann, *ibid.* **40**, 6741 (1989); C. E. Carroll and F. T. Hioe, *ibid.* **42**, 1522 (1990).
- [12] C. Valentin, M.-C. Gagné, J. Yu, and P. Pillet, Europhys. Lett. **17**, 133 (1992); J. Yu, M.-C. Gagné, C. Valentin, R.-L. Yuan, and P. Pillet, J. Phys. III (France) **2**, 1615 (1992).



ELSEVIER

15 November 1994

OPTICS
COMMUNICATIONS

Optics Communications 112 (1994) 136–140

Funnel with orientated Cs atoms

J. Yu, J. Djemaa, P. Nosbaum, P. Pillet

Laboratoire Aimé Cotton¹, CNRS II, Bât. 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay, France

Received 23 May 1994

Abstract

The compression of caesium in an atomic funnel is dominated by the transient regime in which the trapping force is strongly dependent on the initial atomic state. We increased the efficiency by Zeeman pumping or initially orientating the atoms with the local magnetic field. The compressed atomic beam was 200 μm in diameter with a density of 3×10^9 atoms cm^{-3} .

Recent progresses in decelerating and cooling of effusive atomic beams by laser have produced significant improvements in the classical atomic beam method by allowing longer interaction times and reducing the second order Doppler shift. However atomic densities are typically limited to $\sim 10^7$ atoms cm^{-3} , essentially because of the transverse divergence, which is increased during longitudinal cooling; this restricts the signal to noise ratio in low velocity regimes [1]. Higher densities of cooled atoms would extend the applications of this method, and the 2D version of the magneto-optical trap (MOT) offers this possibility [2]. Combining the optical molasses damping force with the position-dependent restoring trapping force, such a trap increases the density of atoms by compressing them into a beam of reduced diameter, just as a funnel. The atom funnel has been first demonstrated independently by Riis et al. [3] and Nellesen et al. [4], for the transition $3s^2S_{1/2} F=1 \rightarrow 3p^2P_{3/2} F'=2$ in sodium.

In this Letter, we report an experiment to funnel caesium atomic beam using the transition $6s^2S_{1/2} F=4 \rightarrow 6p^2P_{3/2} F'=5$. For a first approach, the well

known and simple 1D three level $J=0 \rightarrow J=1$ model [2–5] can be generalized to the $J \rightarrow J+1$ transition with the assumption that the atomic population reaches its steady state in the trap. In our case, this corresponds to the accumulation of the atomic population into the extreme Zeeman sublevels, $m_F = -4$ for $B_T > 0$ or $m_F = +4$ for $B_T < 0$ (B_T refers to the trapping magnetic field). Classically, the atomic magnetic momentum is aligned with the local magnetic field, with minimum Zeeman energy. This simple model leads to a characteristic time τ_c for atomic trajectory damping (e^{-1}) of about 100 μs for a magnetic field gradient ($\partial B_T / \partial x$) of 40 Gauss cm^{-1} and a trap capture range of about ± 2.5 mm and ± 0.9 mm for magnetic field gradients of 15 Gauss cm^{-1} and 40 Gauss cm^{-1} respectively. These results can be extended to the 2D and 3D cases. A crucial difference between a 3D and 2D MOT is that in the 2D case, the compression time is limited by the time of flight (TOF) of the atoms through the trap. For an efficient compression, this time should be long compared to both τ_c and optical pumping time to the steady state. We demonstrate in this work that for a caesium 2D MOT some of the atoms can escape from the trap. The large number of m_F sublevels involved in the ground state, $F=4$, makes the compression oc-

¹ The Laboratoire Aimé Cotton is associated to the Université Paris-Sud.

cur in a transient regime with a long optical pumping time and therefore with a m_F -dependent trapping force. We propose new efficient trapping processes by Zeeman pumping or orientating the atomic population in the direction of the local magnetic field in the trap.

Our 2D-MOT (Fig. 1) consists of 8 current-carrying bars, of cross section $3 \times 3 \text{ mm}^2$, which create a quadrupolar magnetic field in the xOy plane. As they cross the trap, the atoms experience an increasing magnetic field gradient in a zone of 60 mm along the z axis. The 8-bar configuration is convenient because it allows observation at 45° to the laser beams. The 8 current-carrying bars were connected at the entrance and the exit of the trap by wires in circular form. On the trap axis, a spurious longitudinal magnetic field of the order of one Gauss is created by this connection at the entrance of the trap. At the exit, this spurious magnetic field decreases near to zero. The four trapping laser beams intersect in the center of the trap. They are split from an injection-locked ($\Delta\nu \sim 100 \text{ kHz}$) diode laser beam (SDL 150 mW, single mode) [6]. Cylindrical telescopes are used to get rectangular beams of section Δx (or Δy) $\times \Delta z = 6 \times 50 \text{ mm}^2$. The main part of the laser beams, 40 mm width, is used in the MOT zone where magnetic field gradient varies from 15 to 40 Gauss cm^{-1} for a current of 50

A. The remaining part provides a 2D molasses to prevent divergence of the compressed atomic beam; it is also used for the observation downward stream from the trap. The average intensity of each beam was 3.2 mW cm^{-2} with a 80% homogeneity. The laser frequency was tuned about one natural width ($\Gamma/2\pi$) below the $F=4 \rightarrow F'=5$ transition.

The trap was used on caesium atomic beam slowed by the chirping cooling technique [1,7]. The atomic beam density was measured using a hot wire detector 50 cm downward steam from the trap, and also the absorption of a laser beam by atoms near the oven. Both measurements were in agreement. The densities of the slowed atomic beam and that of the compressed one were evaluated by comparing their laser-induced fluorescence with the thermal beam. For an oven temperature of 200°C , the cold atom density has been measured to be at about $10^7 \text{ atoms cm}^{-3}$ at the entrance of the trap. Two superimposed diode laser beams of 6 mm in diameter, cooling and repumping laser, illuminated the atomic beam in the direction opposing the atomic motion. They were linearly polarized in orthogonal directions. The cooling laser power was 9 mW, and was tuned to the $F=4 \rightarrow F'=5$ transition, while the repumping laser of power 1 mW, was tuned to $F=3 \rightarrow F'=4$. Their frequencies were synchronously swept during the longitudinal cooling

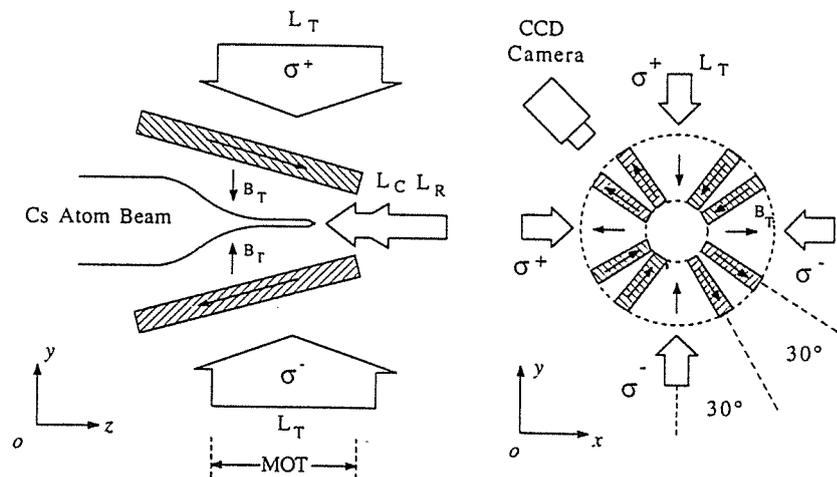


Fig. 1. Experimental setup schematically presented in a front view (yOz) and a right hand view (xOy). At the entrance of the trap, the bars are fixed on a 60 mm diameter circle, and they converge to a 20 mm one at the exit. L_C , L_R and L_T refer to respectively the longitudinal cooling, repumping and trapping laser beams. The arrows indicate the directions of the current in the bars. The local magnetic field (B_T) directions are also shown with arrows.

process. The final velocity was measured by the Doppler fluorescence spectrum showing a velocity dispersion of about $\pm 4 \text{ m s}^{-1}$. The sequence of the MOT compression experiment began with the frequency-chirping ramps of the cooling and the repumping laser (400 MHz, 9 ms). At the end of these ramps the MOT period started, and the slowed monokinetic atomic beam crossed the trap during a typical time interval of 10 ms [1]. The compression process was observed through fluorescence detected with a CCD camera. During the compression, the longitudinal cooling laser was detuned far from resonance ($\sim 80\Gamma$) to avoid any perturbation, while the repumping laser was kept on resonance with the $F=3 \rightarrow F'=4$ transition to provide hyperfine repumping [1,4].

Fig. 2 shows a typical CCD picture of a compressed atomic beam with a longitudinal velocity of 35 m s^{-1} . The complete compression to ~ 0.05 of the initial diameter was obtained after travelling a distance d_p , 25 mm inside the trap. Beyond this distance, the compressed beam looked like a thin "needle" with constant diameter and brightness. We have measured a diameter of the atom needle of $200 \mu\text{m}$ (fwhm) and a maximum factor of 100 for the increase in atomic density up to about 10^9 atoms

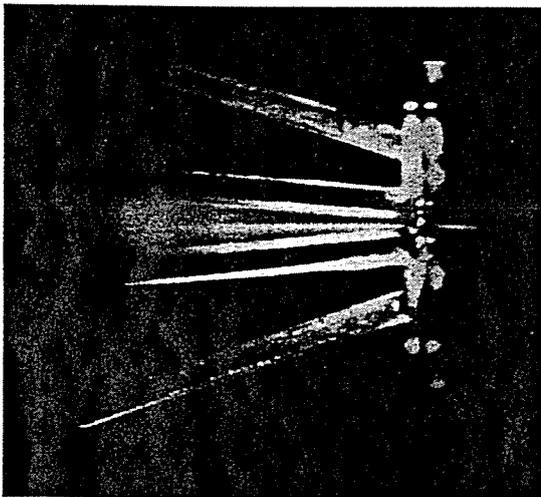


Fig. 2. CCD picture of a compressed atomic beam with longitudinal velocity of 35 m s^{-1} . The picture was integrated during the MOT period (10 ms) following cooling ramps. On the trap axis, the atomic beam goes from left (entrance) to right (exit). It looks like a thin needle out of the trap. One can also see scattered lights from the current-carrying bars and the circular connections at the exit of the trap.

cm^{-3} . Fig. 3 shows the observed compression distance (d_p) linearly varying versus the atomic longitudinal velocity (v_z), until reaching the total length of the trap for 70 m s^{-1} . The slope gives the atomic trajectory compression time $\tau = d_p/v_z \sim 720 \mu\text{s}$. Here d_p was measured from the entrance of the trap to the point where the atomic beam's diameter was reduced to about $200 \mu\text{m}$, which corresponds to a reduction of $0.05 \approx e^{-3}$ of the initial diameter. We remark first, that the density increase of a factor 100 is smaller than the factor 600 obtained if we assume a capture range of about $\pm 2.5 \text{ mm}$, and all the atoms in this range uniformly compressed into a diameter of about $200 \mu\text{m}$. Second, the experimental value of atomic trajectory compression time is larger than the theoretical one, which should be $3\tau_c \sim 300 \mu\text{s}$ for a compression of e^{-3} .

These experimental results reveal the transient character of the compression process, where the trapping force on the atom depends upon its internal state. Complete description of such a process requires the coupled equations of both internal and external atomic states. We give here a simple static description by discussing the trapping forces in the multi-V transition system related to different Zeeman sublevels m_F in the ground state. Two factors can modify the compression process and make the trapping force

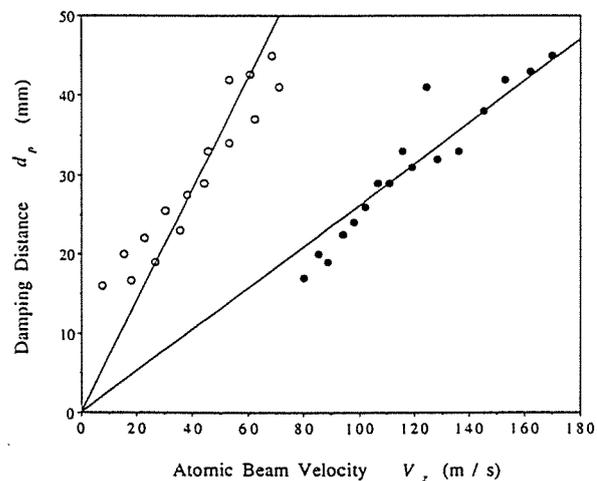


Fig. 3. Experimental values of the compression distance d_p versus the atomic beam longitudinal velocity v_z . The circles correspond to the case where the longitudinal cooling laser is detuned far out of the atomic resonance (80Γ). The black points correspond to the Zeeman pumping case (detuning 3.5Γ).

m_F -dependent. The first one is due to the large variation of the Clebsch–Gordan coefficients leading to asymmetrical σ^+ and σ^- transitions even at the zero field point. The second one comes from the difference between the Larmor frequencies of the $F=4$ and $F'=5$ levels, $\Omega_L=2\pi\times 350$ kHz Gauss $^{-1}$ and $\Omega'_L=2\pi\times 560$ kHz Gauss $^{-1}$, leading to different effective laser detunings for different m_F sublevels inside the trap.

Let us write the steady-state force for each m_F -dependent three-level system as a function of the atomic transverse velocity v and displacement x :

$$F_{\pm}(m_F, v, x) = F_0 \frac{C_{\pm}^2(m_F)s_0}{1 + C_{\pm}^2(m_F)s_0 + \Delta_{\pm}^2(m_F, v, x)},$$

where $F_0 = h\Gamma/2\lambda$ is the saturated force, $s_0 = 2\Omega^2/\Gamma^2$, the saturation parameter at resonance, $C_{\pm}^2(m_F)$ the squared values of the Clebsch–Gordan coefficients associated to the transition $F=4$, $m_F \rightarrow F'=5$, $m_F \pm 1$ and finally $\Delta_{\pm}(m_F, v, x)$ the effective laser detuning for an atom in the m_F sublevel. The last term is contributed by the trapping laser detuning, the Doppler shift and the m_F -dependent Zeeman shift.

We plot on Fig. 4 the m_F -dependent total static force, $F = F_+ + F_-$. Except $F(m_F=0)$, each force exhibits an asymmetric profile: At $x = 1.0$ mm, in the

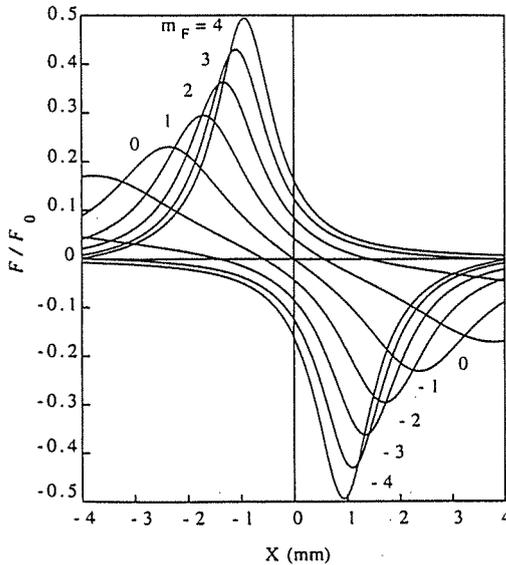


Fig. 4. The m_F -dependent forces as function of the atomic displacement x , for $v=0$, $s_0=1$, $\delta_{LT}=-\Gamma/2\pi$, and $\partial B_T/\partial x=40$ Gauss cm $^{-1}$.

$m_F = -4$ sublevel (corresponding to the steady state) an atom experiences a strong attractive force. Otherwise, in the $m_F = +4$ sublevel, the force experienced is weak and repulsive. For an atomic population initially in a statistic mixture, the most efficient compression cannot be obtained until the atomic population is optically pumped into the steady state. As remarked above, in a 2D trap the optical pumping time may be comparable to the atomic TOF and the maximum compression cannot be obtained.

To make the compression process more efficient, it is necessary to prepare the atomic population in a favorable, at least partially orientated state with respect to the local magnetic field direction. In a first experiment, we keep the frequency of the longitudinal cooling laser near the transition $F=4 \rightarrow F'=5$, with a blue detuning of 3.5Γ during the MOT period. The effect is to excite predominantly the atoms in the upwards-shifted Zeeman sublevels (resonance frequency blue-detuned), and to optically pump them into the downwards-shifted ones (for instance $m_F < 0$ in $x > 0$ and $m_F > 0$ in $x < 0$ for $\partial B_T/\partial x > 0$). A stronger restoring force is so expected, leading to a shorter compression time. In Fig. 3, we present the experimental values (black points) of compression distance versus atomic longitudinal velocity measured in the presence of the Zeeman pumping. We find a compression time τ of about $260 \mu\text{s}$, in quite good agreement with the theoretical value ($3\tau_c = 300 \mu\text{s}$). In this configuration, we were able to compress monokinetic beams with longitudinal velocity up to 170 m s^{-1} . For velocities inferior to 70 m s^{-1} , the transverse diffusion due to the Zeeman pumping becomes significant because of longer interaction times.

Another experiment was carried out using adiabatic alignment of the atomic population with the local magnetic field. In this experiment, the longitudinal cooling laser was σ^- - or σ^+ -polarized to orientate the atoms in the Oz direction during the cooling. The orientation was maintained by a small longitudinal magnetic field of one Gauss, the earth's magnetic field being compensated in the transverse direction. After each ramp, the longitudinal cooling laser is shifted far from the atomic resonance ($\sim 80\Gamma$). The orientation of the atomic population was thus adiabatically transferred into the transverse direction by following the local magnetic field, which becomes gradually transverse inside the trap. The downwards-

or upwards-shifted Zeeman sublevels are predominantly populated in the trap according to the polarization of the longitudinal cooling laser, σ^- or σ^+ . As discussed above, the compression efficiency should be different in these two cases, which is clearly put in evidence in Fig. 5. The fluorescence at maximum of the profile for σ^- polarization was three times of that for σ^+ polarization. The density measurement in the case σ^- was a factor of 300 in enhancement, which is closer to the estimated optimum compression factor (600). We notice that the transverse atomic orientation can be partially destroyed by the presence of any longitudinal magnetic field B_z , if $B_z/B_T \approx 1$. Unfortunately the connections between the current-carrying bars created such a longitudinal magnetic field around the trap axis and so the perfect orientation of the atomic population was difficult to obtain. Nevertheless, the effect of the atomic population orientation has been clearly demonstrated.

In conclusion, the operation of an atomic funnel has been successfully demonstrated for caesium atoms, where a multiple-V transition, $F=4 \rightarrow F'=5$, is involved. The results correspond essentially to what is expected from the Doppler mechanism in the cooling and the compression. The sub-Doppler mechanisms [8–11] were not observed probably because of the extraneous longitudinal magnetic field in the trap.

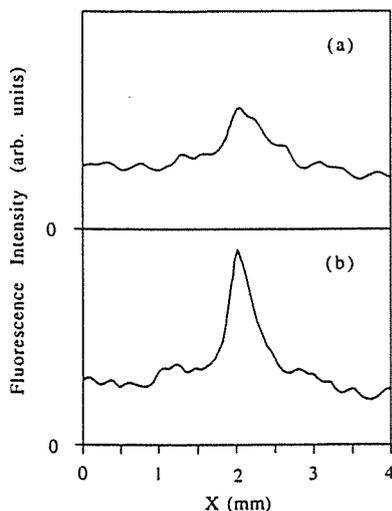


Fig. 5. Transverse fluorescence profiles for the longitudinal cooling laser respectively polarized σ^+ (a) and σ^- (b). The atomic beam longitudinal velocity is 35 m s^{-1} . The profile was measured at 5 mm behind the exit of the trap.

The most dominant feature in the 2D MOT is the short TOF, which limits the compression time to less than 1 ms, leading to a rather different behavior from a 3D MOT, where the trap loading times may be one second. Thus the atoms in a funnel spend most of their time in the transient regime, especially for a transition $F \rightarrow F+1$ with large value of F . We have shown that the orientation of atomic population improves the efficiency of the atomic funnel, by two methods. The first one, laser Zeeman pumping, extends the trap operating range to relatively high longitudinal velocities. It could be applied to the 3D case to shorten the trap loading time. The second proposed method, adiabatic alignment, is specific to the funnel, and gives a better compression efficiency. Finally the performance of cooled and collimated atomic beams has interesting applications in metrology and high resolution spectroscopy, as well in fundamental research into cold atom collisions and collective processes. Such beams can also be the first step for the attractive idea of focussing an atomic beam in the micrometer dimension.

The authors acknowledge stimulating discussions with Dr. C. Salomon and thank J.-M. Sintes and the members of the technical staffs of the laboratory for the trap fabrication.

References

- [1] J. Yu, S. Guellati, M.C. Gagne, A. Clairon and J.L. Picque, *Optics Comm.* 82 (1991) 27.
- [2] E.L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu and D.E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* 59 (1987) 2631.
- [3] E. Riis, D.S. Weiss, K.A. Moler and S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* 64 (1990) 1658.
- [4] J. Nellesen, J. Werner and W. Ertmer, *Optics Comm.* 78 (1990) 300.
- [5] P.D. Lett, W.D. Phillips, S.L. Rolston, C.E. Tanner, R.N. Watts and C.I. Westbrook, *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989) 2084.
- [6] J. Yu, M.C. Gagne, C. Valentin, R.L. Yuan and P. Pillet, *J. Phys. III France* 2 (1992) 1615.
- [7] W. Ertmer, R. Blatt, J.L. Hall and M. Zhu, *Phys. Rev. Lett.* 54 (1985) 996.
- [8] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989) 2023.
- [9] A.M. Steane and C.J. Foot, *Europhys. Lett.* 14 (1991) 231.
- [10] C. Valentin, M.C. Gagne, J. Yu and P. Pillet, *Europhys. Lett.* 17 (1992) 133.
- [11] J. Yu, M.C. Gagne, C. Valentin, S. Guellati, J. Djemaa, R.L. Yuan and P. Pillet, *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* 42 (1993) 109.

Second-harmonic generation in a microradius LiNbO_3 cylinder with a quasi-elliptical cross section

J. Yu, K. Giulietti, F. Sourgen, A. Ross, and J. P. Wolf

Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire, Unité Mixte de Recherche 5579, Centre National de la Recherche Scientifique, Université Claude Bernard-Lyon 1, Bâtiment 205, Campus de la Doua, 69622 Villeurbanne Cedex, France

M. Ferriol, G. Foulon, C. Goutaudier, M. T. Cohen-Adad, and G. Boulon

Laboratoire de Physico-Chimie des Matériaux Luminescents, Unité Mixte de Recherche 5620, Centre National de la Recherche Scientifique, Université Claude Bernard-Lyon 1, Bâtiment 205, Campus de la Doua, 69622 Villeurbanne Cedex, France

Received November 9, 1998

LiNbO_3 single-crystal fibers with diameters of 63 and 230 μm were grown, and the second-harmonic-generation (SHG) process was studied with femtosecond laser pulses perpendicularly focused to the fiber. SHG occurred without collinear phase matching, leading to wavelength-independent overall conversion efficiency, unlike in a bulk crystal. The scattering pattern of the second harmonic exhibited an intense forward peak and an almost-uniform, less-intense distribution around the fiber, owing to trapping in high- Q whispering gallery modes. Implementation of a second-order autocorrelator with the 63- μm fiber demonstrates its application potential. © 1999 Optical Society of America

OCIS codes: 190.2620, 320.2250, 290.0290, 320.7110.

Microradius dielectric cylinders and microsized dielectric spheres provide microcavities that support high- Q whispering gallery modes. Optical processes are modified in such a confined space with respect to behavior in bulk material. Intensive studies of optical processes in microcavities are being conducted.¹ Lasing,^{2,3} stimulated Raman scattering,⁴⁻⁶ and third-order sum-frequency generation⁷ have been observed with intense nanosecond or picosecond pulses. Recently third-harmonic generation in microdroplets was studied by use of femtosecond pulses.⁸ Asymmetric microcavities are receiving more and more attention because of their directionality of emission.⁹ However, the centrosymmetric nature of spherical or cylindrical liquid samples has impeded the study of the processes related to second-order susceptibility χ_2 , in particular, second-harmonic generation (SHG) in microcavities.

In this Letter we report, for the first time to our knowledge, the observation of SHG in a microradius single-crystal LiNbO_3 fiber perpendicularly illuminated by femtosecond laser pulses. The fiber was produced by the laser-heated pedestal growth method and presented a near-elliptical cross section (inset of Fig. 1) with a small diameter of 63 μm (or 230 μm) and a large diameter of 80 μm (or 292 μm).¹⁰ Several characteristics of the observed SHG process distinguish it clearly from classic SHG in a bulk nonlinear crystal: (a) In the configuration leading to the most efficient conversion, both the fundamental and the harmonic waves are polarized along the z axis (the optical axis), even though collinear phase matching is impossible in this case. (b) A decrease of conversion efficiency of nearly an order of magnitude is observed for the 230- μm fiber compared with that for the 63- μm fiber. The SHG process is thus enhanced by tight focusing and confinement in a microcavity. (c) The observed scattering patterns for the fundamental and the

second harmonic are rather different. This difference suggests a distinct propagation mechanism for each of these waves inside the fiber. An example of application of a microfiber doubler by implementation of a second-order autocorrelator with a 63- μm fiber is presented in this Letter.

Figure 1 illustrates our experimental setup. The fibers were grown along the a axis (coincident with the x axis). The c axis (optical axis) coincides with the z axis. The b axis lies in the xy plane and makes an angle of 30° with the y axis. LiNbO_3 is a uniaxial crystal belonging to the trigonal point group $3m$. The nonzero elements of the nonlinear optical tensor d_{ij} are given in electrostatic units in Ref. 11: $d_{22} = 7.4 \times 10^{-9}$, $d_{31} = 14 \times 10^{-9}$, and $d_{33} = 98 \times 10^{-9}$. In a bulk crystal, type I phase matching can be realized in SHG for a wavelength larger than 1 μm . The incident laser beam (along the y axis) comes from a Cr:LiSAF-based mode-locked oscillator that typically delivers pulses of 150 fs and 100-mW mean power, with a repetition rate of 92 MHz, at a central wavelength of 850 nm.

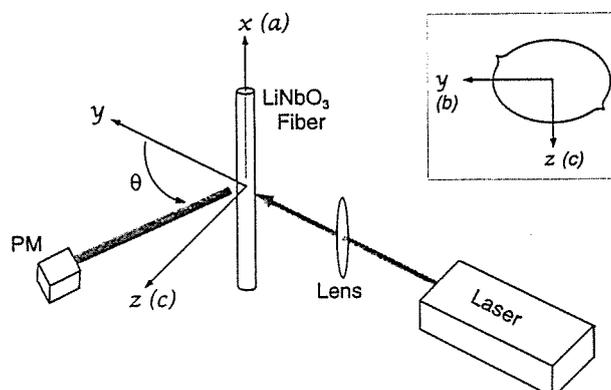


Fig. 1. Experimental setup. The inset shows the cross section of the LiNbO_3 fibers. PM, photomultiplier tube.

A single lens of 50-mm focal length is used for tight focusing of the laser beam on the center of the fiber, resulting a spot of 30- μm diameter. The incident beam is linearly polarized. A half-wave plate allows us to rotate the incident polarization. An angular analysis of the scattered light is performed by use of a compact photomultiplier tube (PMT) fixed to the arm of a goniometer. The goniometer is driven by a stepper motor with a rotation axis coinciding with the fiber. With a short-wavelength-pass filter, the scattered fundamental and second harmonic can be detected separately and compared in intensity. The polarization of the scattered lights is analyzed with a polarizer placed in front of the PMT.

We first analyzed the polarization of the second harmonic, with the PMT placed on the y axis ($\theta = 0^\circ$). For a horizontally or a vertically polarized fundamental beam [$E_z(\omega)$ or $E_x(\omega)$] the observed SHG was always mainly horizontally polarized [$E_z(2\omega)$]. The measured polarization ratio, $[E_z(2\omega)/E_x(2\omega)]^2$, was 13 for the horizontal and 8 for the vertical incident polarization. This result is in agreement with the structure of the d_{ij} tensor of LiNbO_3 . The z -polarized fundamental beam is indeed coupled to only the z -polarized nonlinear polarization, $P_z^z(2\omega) = 2d_{33}E_z(\omega)$, whereas the x -polarized fundamental beam is coupled to both the z - and the y -polarized nonlinear polarizations. The latter does not propagate along the y axis and thus cannot be detected. Only the z -polarized nonlinear polarization, $P_z^x(2\omega) = 2d_{31}E_x(\omega)$, is detected, which allows us to determine further the ratio between the SHG intensities for the z - and the x -incident beams, $I_z^z(2\omega)/I_z^x(2\omega)$. Theoretically, this ratio is given by $[P_z^z(2\omega)/P_z^x(2\omega)]^2 = (d_{33}/d_{31})^2 = 49$. Experimentally a value of 36 was obtained, which is somewhat smaller than the theoretical one. This ratio was very sensitive to the alignment of the fiber with respect to the incident beam. In addition, the initial convergence and the further focusing of the incident beam inside the fiber provided off-axis polarization, which decreased the experimentally measured ratio. With a y -polarized incident beam along the z axis, a y -polarized second harmonic was detected by the PMT placed on the z axis, $P_y^y(2\omega) = 2d_{22}E_y(\omega)$. The intensity of the second harmonic was relatively low, as predicted by the small value of d_{22} . We deduce that the polarization as well as the relative intensity of SHG in the microradius fiber can be simply predicted by the d_{ij} tensor, independently of the phase-matching, unlike for a bulk nonlinear crystal.

For the most-efficient configuration, a z -polarized incident beam along the y axis, SHG intensity was measured as a function of incident fundamental mean power (Fig. 2). The experimental data are well fitted by a parabola. The conversion efficiency, $P_{\text{peak}}(2\omega)/P_{\text{peak}}(\omega)$, was measured for 100-mW mean power. Focused on a spot of 30- μm diameter, the incident peak intensity was $1.0 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ for an energy per pulse of 1.1 nJ. The mean intensities of the SHG and the fundamental were measured at several different scattering angles. The raw data were corrected for the PMT spectral response curve, the transmission curve of the short-wavelength-pass filter, and the dif-

ference in duration of the fundamental and the second-harmonic pulses. Spectra from a Fourier-transform spectrometer showed $\Delta\nu(2\omega)/\Delta\nu(\omega) = 1.31$, from which one can determine the ratio between the pulse durations, $\Delta t(2\omega)/\Delta t(\omega) = [\Delta\nu(2\omega)/\Delta\nu(\omega)]^{-1} = 0.76$. The obtained efficiencies near $\theta = 0^\circ$, $\theta = 45^\circ$, $\theta = 90^\circ$, and $\theta = 135^\circ$ ($\pm 6^\circ$), are 2.9×10^{-4} , 2.6×10^{-4} , 2.5×10^{-4} , and 6.8×10^{-4} , respectively. These values are nearly uniform around the forward-scattering direction. They increase significantly, however, around $\theta = 135^\circ$. From these data the mean conversion efficiency is calculated to be 3.7×10^{-4} . With an identical incident beam, the mean conversion efficiency was measured for the 230- μm fiber. The obtained result was 5.3×10^{-5} , which is nearly 1 order of magnitude lower than that for the 63- μm fiber. Enhancement of the SHG in a microradius fiber is thus clearly demonstrated. In a simple model of the geometric optics this enhancement can be regarded as being due to the tighter focusing inside the fiber with a smaller radius. This tight focusing leads to a higher intensity as well as a larger angular dispersion of propagation vectors, which makes the noncollinear phase-matching process more efficient.

The angular distributions for the fundamental and the second harmonic were recorded in the scattering plane (Fig. 3) with an angular resolution of $\Delta\theta = 0.47^\circ$. Comparing the scattering patterns for SHG [Fig. 3(b)] and the fundamental [Fig. 3(a)], we note a striking difference for scattering angles θ larger than $\sim 100^\circ$. In this region the fundamental scattering shows a low-intensity zone known in the literature as Alexander's dark band.¹² This zone is delimited by primary and secondary rainbows. In Fig. 3(a), the primary rainbow can be distinguished from the noise around $\theta = 140^\circ$. The SHG scattering pattern shows, however, a quite-uniform distribution over this region [Fig. 3(b)]. This result confirms the higher conversion efficiency observed around $\theta = 135^\circ$. We also note the absence of the primary rainbow for the SHG. Around the forward direction, the fringe structure in the SHG angular distribution could be explained by the noncollinear phase matching, which is more efficient with the large propagation-vector dispersion of the incident beam in module as well in direction. These observations

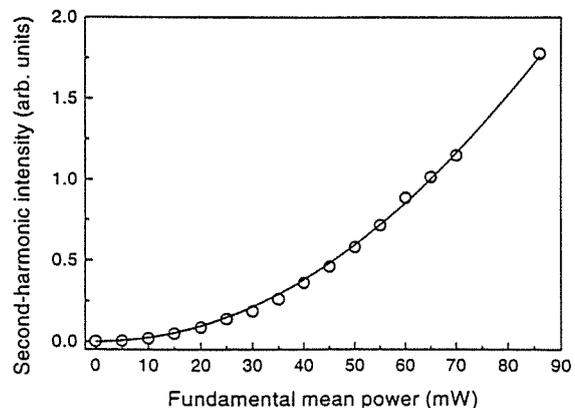


Fig. 2. SHG intensity as a function of incident fundamental mean power.

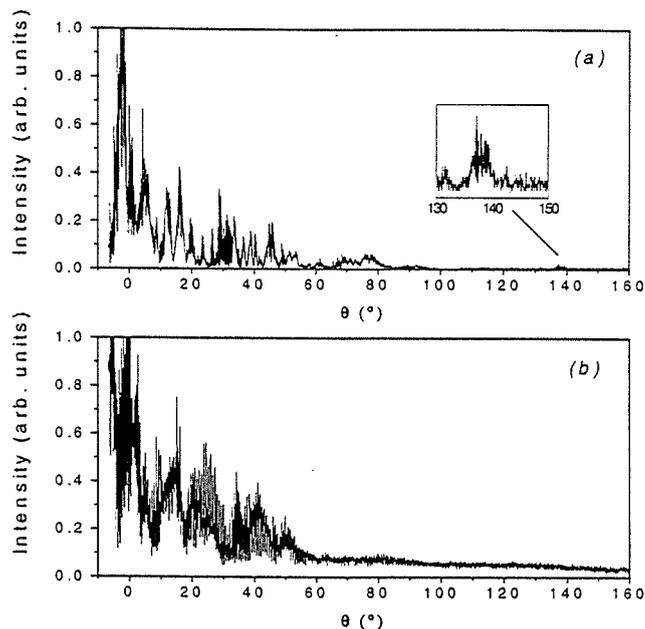


Fig. 3. Angular distributions of the scattered intensities for (a) the fundamental and (b) SHG in the scattering plane. The inset in (a) shows a detail around the primary rainbow.

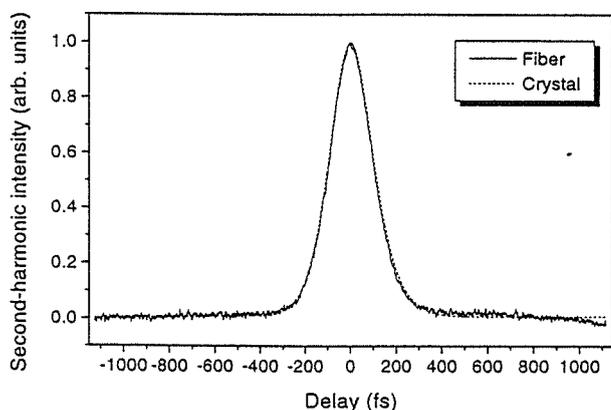


Fig. 4. Autocorrelation traces obtained with the 63- μm LiNbO₃ fiber and the bulk LBO crystal.

suggest, first, that the second harmonic is generated inside the fiber from the incident fundamental beam after its transmission and focusing through the front convex surface of the fiber. Internal reflected lights, such as those contributing to the primary rainbow in the fundamental scattering pattern, do not lead to efficient SHG, owing to the microscope anisotropy of LiNbO₃ crystal: After an internal reflection the incident beam is no longer totally z polarized, and the effective nonlinear coupling coefficient decreases rapidly. In addition, the internally reflected light is unfocused and thus has a low intensity. Second, the blue light from SHG can be trapped in high- Q whispering-gallery modes and can propagate along the rim of the fiber. The leakage from these modes contributes to the observed uniform SHG distribution around the fiber. For the fundamental beam, coupling into high- Q modes is not efficient, because the beam is tightly focused on

the center of the fiber and thus has a poor overlap with high- Q modes.

Finally, we present an implementation of a non-collinear second-order autocorrelator with a 63- μm fiber in the place of the usually nonlinear bulk crystal. Two incident parallel beams separated by 10-mm center to center were focused by a 50-mm lens onto the fiber. The autocorrelation signal was detected at the forward direction ($\theta = 0^\circ$) and integrated over $\Delta\theta = 2^\circ$. Figure 4 shows the obtained autocorrelation trace compared with the trace obtained with a 0.5-mm-thick bulk LBO crystal. Although the crystal requires a precise phase-matching angle (type I) for a given wavelength, the SHG process in the fiber does not require phase matching, and the conversion efficiency is thus wavelength independent. This independence provides a wide bandwidth doubler. This property, together with the good signal-to-noise ratio shown in Fig. 4, promises a large application potential, especially for characterization of ultrashort pulses of the order of 10 fs, for which spectral acceptance of a bulk crystal becomes a limiting factor.

In summary, the SHG process has been studied in a microradius LiNbO₃ fiber by use of perpendicularly incident femtosecond laser pulses. SHG occurs without collinear phase matching, which allows a wide bandwidth microdoubler and promises a large application potential of the studied fiber for nonlinear processes with ultrashort laser pulses.

J. Yu's e-mail address is jinyu@cognac.univ-lyon1.fr.

References

1. R. K. Chang and A. J. Campillo, eds., *Optical Processes in Microcavities* (World Scientific, Singapore, 1996).
2. H. M. Tzeng, K. F. Wall, M. B. Long, and R. K. Chang, *Opt. Lett.* **9**, 499 (1984).
3. V. Lefevre-Seguin, J. C. Knight, V. Sandoghdar, D. S. Weiss, J. Hare, J. M. Raimond, and S. Haroche, in *Optical Processes in Microcavities*, R. K. Chang and A. J. Campillo, eds. (World Scientific, Singapore, 1996), pp. 101–133.
4. J. B. Snow, S.-X. Qian, and R. K. Chang, *Opt. Lett.* **10**, 37 (1985).
5. H.-B. Lin, A. L. Huston, J. D. Eversole, and A. J. Campillo, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 2079 (1990).
6. R. G. Pinnick, G. A. Fernandez, J.-G. Xie, T. Ruekgauer, J. Gu, and R. L. Armstrong, *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 865 (1992).
7. D. H. Leach, R. K. Chang, W. P. Acker, and S. C. Hill, *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 34 (1993).
8. J. Kasparian, B. Krämer, L. P. Dewitz, S. Vajdar, P. Rairoux, B. Vezin, V. Boutou, T. Leisner, W. Hübner, J. P. Wolf, L. Wöster, and K. H. Bennemann, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2952 (1997).
9. J. U. Nöckel and A. D. Stone, *Nature (London)* **385**, 45 (1997).
10. G. Foulon, M. Ferriol, A. Brenier, M.-T. Cohen-Adad, and G. Boulon, *Chem. Phys. Lett.* **245**, 555 (1995).
11. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic, New York, 1992).
12. C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley, New York, 1983).

Enhanced Backward-Directed Multiphoton-Excited Fluorescence from Dielectric Microcavities

Steven C. Hill

Army Research Laboratory, 2800 Powder Mill Road, Adelphi, Maryland 20783-1197

Veronique Boutou, Jin Yu, Stephane Ramstein, and Jean-Pierre Wolf
*LASIM (UMR5579), Universite Claude Bernard Lyon 1, 43 bd du 11 Novembre,
 69622 Villeurbanne Cedex, France*

Yong-le Pan

Physical Science Laboratory, New Mexico State University, Las Cruces, New Mexico 88003-8002

Stephen Holler and Richard K. Chang

Department of Applied Physics and Center for Laser Diagnostics, Yale University, New Haven, Connecticut 06520-8284
 (Received 28 January 2000)

We demonstrate theoretically and experimentally that one-, two-, and three-photon excited fluorescence from dye molecules in spherical microcavities has an asymmetrical angular distribution and is enhanced in the backward direction. The enhancement ratios (of intensities at 180° and 90°) are 9, 5, and 1.8 for three-, two-, and one-photon excitation, respectively. Even larger ratios are expected for microspheres with an index of refraction larger than that used in the experiments. Because of the reciprocity principle and concentration of the incident wave inside particles, the backward enhancement is expected to occur even with nonspherical particles.

PACS numbers: 33.80.Wz, 33.50.-j, 42.25.Fx, 87.64.Vv

Fluorescence of an ensemble of freely rotating molecules is isotropic. However, when these molecules are homogeneously imbedded in a dielectric microcavity (such as a sphere, spheroid, or cylinder), the emission can become anisotropic. The microcavity can concentrate the internal field intensity $I(\mathbf{r})$ of the incident radiation [1–3], and can introduce an angular-dependent reemission efficiency [4]. Because of the reciprocity principle [5,6], fluorescence from regions of high $I(\mathbf{r})$ tends to return toward the illuminating source. This backward enhancement is expected not only for one-photon [7] but even more so for multiphoton-excited fluorescence (MPEF) that is proportional to $I^n(\mathbf{r})$. The concentration and redirection effect for a spherical particle are analogous to epi-illumination microscopy, where the lens focuses the incident light and directs a large fraction of the fluorescence back toward the source (here the microcavity itself, which is the sample, acts as the lens to focus the incident wave and redirect the fluorescence emission). Microscopy using MPEF has demonstrated improved contrast and resolution [8]. Backward enhancement may be useful for the detection of ultraweak one-photon and especially MPEF from microparticles. The concept should also help in detecting nanocrystals, quantum well structures [9], and possibly even single molecules [10], placed inside or on the surface of a dielectric microcavity, e.g., a glass sphere [11,12]. The effect may call to mind coherent backscattering or weak localization in random media [13]. However, MPEF is not a coherent process (it is emitted spontaneously), and it occurs over a range of wavelengths different from the incident wave.

In this Letter, we demonstrate theoretically and experimentally, for the first time, the existence of backward enhancement of multiphoton-excited fluorescence in microcavities. We show that the enhancement increases with the order n of the multiphoton-excitation process. Specifically, we investigate the angular dependence (from 0° to 180°) of the fluorescence from microdroplets with the same dye, excited by one, two, and three photons. Remarkable enhancement in the backward direction (as much as a factor of 9 relative to the 90° emission for the three-photon excitation process) is both predicted and observed using 100 femtosecond laser pulses. We have calculated that for microspheres, the backward enhancement increases with the refractive index.

The principle of reciprocity [5,6] as applied to this problem implies the following: If a source at \mathbf{r}_a far from the particle generates at \mathbf{r}_b (inside the particle) an intensity that is large relative to intensities at other internal points, then a source at \mathbf{r}_b radiates preferentially toward \mathbf{r}_a (i.e., in the backscattering direction). If the input intensity at \mathbf{r}_b is relatively weak, then a source at \mathbf{r}_b tends to radiate in directions other than \mathbf{r}_a . Reciprocity relations are exact only when the excitation and emission wavelengths are identical. When the wavelengths are different [as when the source at \mathbf{r}_b is a fluorescent molecule that reemits longer-wavelength radiation in proportion to $I^n(\mathbf{r})$], the reciprocity principle still tends to imply the angular preferences stated above so long as the refractive index dispersion between the two wavelengths is small.

The total fluorescence power $U_n(\theta_d)$ collected by a detector at angle θ_d (with respect to the incident beam)

subtending a differential element of solid angle $d\Omega$ is the sum of the contributions from all molecules in the cavity of volume V ,

$$U_n(\theta_d) = \int_V \sigma_n I^n(\mathbf{r}) \rho(\mathbf{r}) \times \{F[\mathbf{r}, \theta_d, \mathbf{p}(\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r}))] d\Omega / 4\pi\} dV,$$

where σ_n is the n -photon absorption cross section, $I(\mathbf{r})$ is the internal intensity of the incident wave, $\rho(\mathbf{r})$ is the density of molecules, and $F[\mathbf{r}, \theta_d, \mathbf{p}(\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r}))] d\Omega / 4\pi$ is the probability that a photon emitted from a molecule at \mathbf{r} with its orientation along the \mathbf{p} (dipole) axis reaches the detection aperture. Both $\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r})$ and $F[\mathbf{r}, \theta_d, \mathbf{p}(\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r}))]$ are dependent on the shape, size, and refractive index distribution of the microparticle and each must be integrated over the appropriate frequency bandwidth.

We calculate $U_n(\theta_d)$ for the specific case of a spherical liquid droplet containing uniformly dispersed dye molecules [$\rho(\mathbf{r}) = \rho_0$] which have a molecular rotation time much shorter than their fluorescence lifetime. Hence, $F[\mathbf{r}, \theta_d, \mathbf{p}(\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r}))]$ is averaged over molecules having all orientations and can be written as $F(\mathbf{r}, \theta_d)$. To calculate $F(\mathbf{r}, \theta_d)$ for a sphere we expand the fields of the dipole in the vector spherical harmonics, match the boundary conditions at the surface [4,14], and normalize the frequency-integrated power collected from randomly oriented dipoles at \mathbf{r} by the total frequency-integrated power emitted in all directions. This normalization differs from that used in [4] and means that smaller spheres can also be modeled. $\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r})$ is calculated by Fourier transforming the frequency-dependent fields (obtained at each frequency within the excitation spectrum using the Lorentz-Mie theory [3]). The excitation spectrum of the ultrashort incident pulse is assumed to be Fourier transform limited. In numerically integrating over frequency for both $F(\mathbf{r}, \theta_d)$ and $\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r})$ we use a finer integration step when near the morphology dependent resonances (MDRs, or whispering gallery modes). We define $I(\mathbf{r}) = \mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r}) (\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r}))^*$. The integration over the particle volume is performed using a Monte Carlo approach with more than 4×10^6 integration points for each angle θ_d .

Figure 1(a) shows the spatial distribution of $F(\mathbf{r}) = F(\mathbf{r}, \theta_d = 0^\circ)$ in the equatorial plane, integrated over frequency and all dipole orientations. Figures 1(b) and 1(c) display $I(\mathbf{r})$, and $I^3(\mathbf{r})$, respectively. Because of reciprocity, $F(\mathbf{r})$ [rotated 180° from the orientation shown in Fig. 1(a)] and the $I^n(\mathbf{r})$ in 1(b) and 1(c) tend to be largest in the same regions, and so the largest $U_n(\theta_d)$ is found when $\theta_d = 180^\circ$.

The experiments were performed on ethanol or methanol droplets containing Coumarin 510 dye. The droplets of $70 \pm 10 \mu\text{m}$ diameter were produced with a piezodriven nozzle source, synchronized to the laser system so that each laser pulse excited one droplet. The droplet size

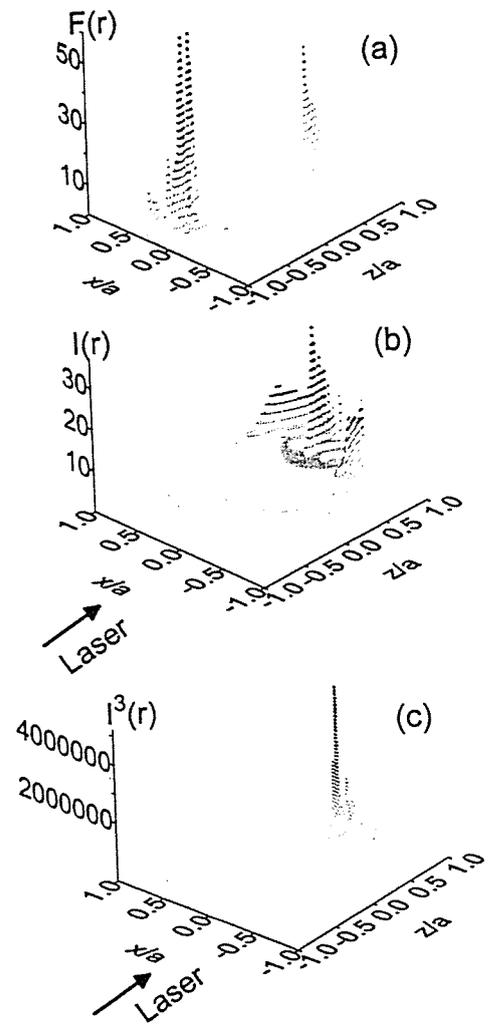


FIG. 1. Spatial distributions in the equatorial plane: (a) fraction of fluorescence collected at $\theta_d = 0^\circ$, $F(\mathbf{r}) = F(\mathbf{r}, \theta_d = 0^\circ)$, after integration over all dipole orientations. The molecular emission is centered at 510 nm (assumed Lorentzian with $\text{FWHM} = 500 \text{ cm}^{-1}$); (b),(c) intensities $I(\mathbf{r})$ and $I^3(\mathbf{r})$, respectively. The center wavelengths and linewidths are 400 and 5 nm in (b), and 1200 and 15 nm in (c). The sphere diameter is $2a = 20 \mu\text{m}$, and its refractive index $m = 1.36 + i10^{-6}$.

and shape were monitored using a microscope and/or forward scattering of a He:Ne laser beam. The laser system consisted of a Kerr-lens mode-locked oscillator delivering 100 fs pulses, a 1 kHz Ti:sapphire regenerative amplifier, and an optical parametric amplifier. The use of ultrashort laser pulses has the advantage of depositing low energies in the particle and preventing competitive processes such as stimulated Brillouin scattering. The central wavelengths used for the one-, two-, and three-photon excitation of the microdroplets were 400, 850, and 1200 nm, respectively. Incident intensities were adjusted, depending on the order of the excitation process, to be 10 times below the measured saturation values (typically 6 kW/cm^2 at 400 nm, 2 GW/cm^2 at 850 nm, and 100 GW/cm^2 at 1200 nm). Emission spectra of both oscillator and amplifier outputs were monitored with a spectrometer and a

charge-coupled device camera, and the pulse duration of the amplified output was determined with an autocorrelator. The angular distribution of the far field fluorescence intensity, which peaks at 510 nm, was measured between $\theta_d = 0^\circ$ (forward) and $\theta_d = 180^\circ$ by using a photomultiplier tube (PMT) mounted onto a stepper-motor driven goniometer (with an angular resolution of 0.6°). A dichroic beam splitter was added for the near-backward direction measurements. The unwanted scattering of the pump radiation was reduced by using filters and by the very low quantum efficiency of the PMT at 850 and 1200 nm.

Figure 2 shows both experimental and theoretical results for the one-, two-, and three-photon excitation of the microdroplet fluorescence. These results constitute the first observation of a strongly asymmetric spontaneous emission from a multiphoton-excited spherical microcavity. Both results demonstrate the remarkable effect that the maximum of the incoherently emitted light is in the direction towards the exciting source, and that this enhancement strongly increases with the order of the multiphoton process. The backward enhancement of the emission was found in computations to increase as the refractive index of the microsphere increases, because the fields are more concentrated for larger m .

The experimental data were obtained on different days over several months, which demonstrates the good reproducibility of the experiment. The standard deviation, resulting from noise, laser power variations, and droplet stream stability is typically 0.2. We verified that the 2PEF and 3PEF processes were proportional to $I^2(\mathbf{r})$ and $I^3(\mathbf{r})$, respectively. The agreement between theory and experiment is remarkable even though the droplet diameter used in the experiments was $70 \pm 10 \mu\text{m}$ and in the calculations was $20 \mu\text{m}$, due to CPU-time limitations. Computationally, the dependence of the angular distribution on size was investigated (discussed below) and found to be nearly size independent for diameters $> 6 \mu\text{m}$. Both theory and experiment yield similar fluorescence intensity ratios $I(180^\circ)/I(90^\circ)$, which are 1.8, 5, and 9 for the one-, two-, and three-photon excitation, respectively. Similar angular patterns were obtained experimentally for multiphoton excitation when the dye concentration was varied from 0.02 to 2 g/l. For linear excitation, only a weak asymmetry is observed in the backward direction. The steep rise in narrow angular range (10°) around $\theta_d = 180^\circ$ for the measured two- and three-photon excited fluorescence agrees both qualitatively and quantitatively with theory.

Besides the observed asymmetry, the angular distribution was found to be remarkably smooth. The angular distribution of on-resonance elastic scattering exhibits many lobes commensurate with the MDR mode number. However, for the one-photon and multiphoton-excited fluorescence case, the volume integral of the product of $F(\mathbf{r}, \theta_d)$ and $I^n(\mathbf{r})$ averages out the MDR structures in the calculated angular distribution even for single frequency ex-

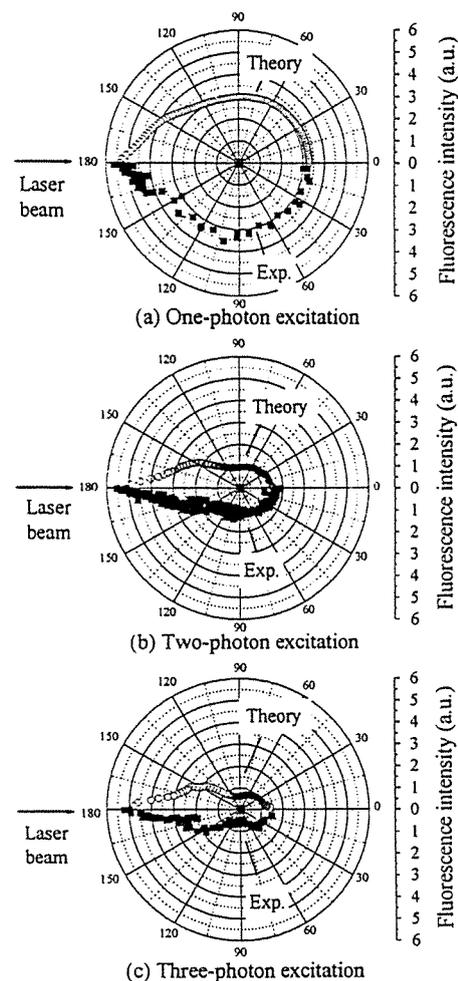


FIG. 2. Experimental and theoretical angular distributions of (a) one-, (b) two-, and (c) three-photon excited fluorescence from microdroplets made of ethanol ($m = 1.36 + i10^{-6}$) in (a) and (b), and methanol ($m = 1.325 + i10^{-6}$) in (c), and containing Coumarin 510. For the calculations the excitation center wavelength is 800 nm and the linewidth is 5 nm in (b), and the other wavelengths, linewidths, and diameter are as in Fig. 1. The calculated and experimental curves are normalized at $\theta_d = 90^\circ$.

citation of an input and/or output resonance (results not shown).

The effect of the size on the angular distribution was investigated computationally. Figure 3 shows the ratio $I(180^\circ)/I(90^\circ)$ for one-, two-, and three-photon excited fluorescence with increasing droplet diameter from 0.5 to $20 \mu\text{m}$. This ratio approaches a constant for particles with diameters beyond $6 \mu\text{m}$. Therefore, we can expect that using the calculated angular distribution results for $20\text{-}\mu\text{m}$ -diameter particles should be applicable for the experimental droplets of $70 \mu\text{m}$ in diameter. This is confirmed by the agreement between theory and experiment (see Fig. 2). Another observation of a convergence to specific values (the angles of peak emission of third harmonic generation) was reported for 16- to $64\text{-}\mu\text{m}$ -diameter droplets [15].

In summary, we propose that, because of reciprocity, MPEF from many shapes of dielectric microcavities or

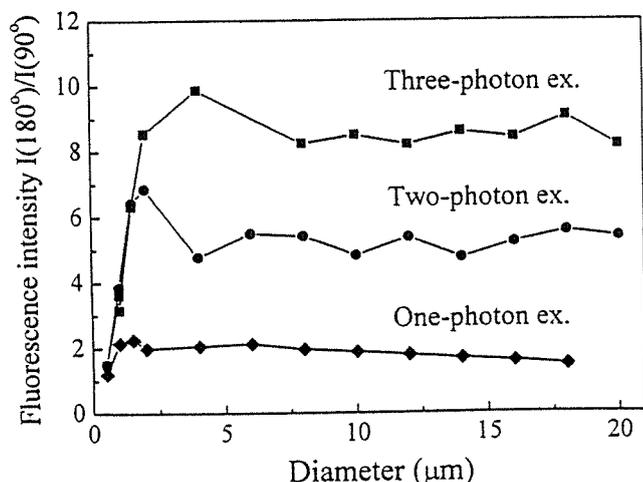


FIG. 3. Size dependence of the $I(180^\circ)/I(90^\circ)$ calculated for droplets with diameters from 0.5 to 20 μm . Other parameters are as in Fig. 2.

particles will be enhanced in the backward direction, and the backward enhancement will increase with the order n of multiphoton excitation. We verified this hypothesis both theoretically and experimentally for spherical dielectric microcavities. Measured and calculated angular distributions of emission have similar shapes and constitute the first observation of a strongly asymmetric angular distribution of the MPEF from a microcavity. The $I(180^\circ)/I(90^\circ)$ increases with the order of multiphoton process reaching a ratio of 9 for $n = 3$ excitation. The backward enhancement should be larger for particles having a larger refractive index.

J. P. W. acknowledges NATO's support. Y.-L. P. acknowledges financial support from the Army Research Laboratory (ARL, DAAL01-98-C0056). S. H. and R. K. C. acknowledge partial financial support from the U.S. Army

Research Office (DAAG55-97-1-0349), the Air Force Research Laboratory, and ARL (DAAL01-97-2-0128).

- [1] J. A. Lock and E. A. Hovenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **8**, 1541 (1991).
- [2] J. P. Barton, *Appl. Opt.* **34**, 5542 (1995).
- [3] P. W. Barber and S. C. Hill, *Light Scattering by Particles: Computational Methods* (World Scientific, Singapore, 1990), pp. 140, 233.
- [4] S. C. Hill, H. I. Saleheen, M. D. Barnes, W. B. Whitten, and J. M. Ramsey, *Appl. Opt.* **35**, 6278 (1996).
- [5] R. F. Harrington, *Time-Harmonic Electromagnetic Fields* (McGraw-Hill, New York, 1961), pp. 116–125.
- [6] S. C. Hill, G. Videen, and J. D. Pendleton, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2522 (1997).
- [7] S. D. Druger and P. J. McNulty, *Phys. Rev. A* **29**, 1545 (1984).
- [8] S. Maiti, J. B. Shear, R. M. Williams, W. R. Zipfel, and W. W. Webb, *Science* **275**, 530 (1997).
- [9] X. D. Fan, S. Lacy, and H. L. Wang, *Opt. Lett.* **24**, 771 (1999).
- [10] N. Lermer, M. D. Barnes, C. Y. Kung, W. B. Whitten, and J. M. Ramsey, *Anal. Chem.* **69**, 2115 (1997).
- [11] V. Sandoghdar, F. Treussart, J. Hare, V. Lefevre-Seguin, J. M. Raimond, and S. Haroche, *Phys. Rev. A* **54**, 1777 (1996).
- [12] H. Yukawa, S. Arnold, and K. Miyano, *Phys. Rev. A* **60**, 2491 (1999).
- [13] D. S. Wiersma, M. P. van Albada, and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1793 (1995).
- [14] H. Chew, P. J. McNulty, and M. Kerker, *Phys. Rev. A* **13**, 396 (1976).
- [15] J. Kasparian, B. Kramer, S. Vajda, P. Rairoux, B. Vezin, V. Boutou, T. Leisner, W. Hubner, J. P. Wolf, L. Woste, and K. H. Bennemann, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2952 (1997).

Backward supercontinuum emission from a filament generated by ultrashort laser pulses in air

J. Yu, D. Mondelain, G. Ange, R. Volk, S. Niedermeier, and J.P. Wolf

Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire, UMR CNRS 5579,
Université Claude Bernard-Lyon 1, 43, Bd. du 11 Novembre 1918, F-69622 Villeurbanne Cedex, France
Fax: 33 472 43 15 07, email: jinyu@lasim.univ-lyon1.fr

J. Kasparian, R. Sauerbrey

Institut für Optik und Quantenelektronik, Friedrich Schiller Universität Jena,
Max-Wien-Platz 1, 07743 Jena, Germany

Abstract : Backward emission of the supercontinuum from a light filament induced by high-intensity femtosecond laser pulses propagating in air has been observed to be enhanced as compared to linear Rayleigh-Mie scattering. This enhancement is interpreted as a nonlinear scattering process onto a longitudinal refractive-index gradient induced by the laser pulse itself. The spectral dependence of the supercontinuum angular distribution is also presented.

OCIS Codes: 190.3270 Kerr effect; 190.5530 Pulse propagation and solitons; 190.5940 Self-action effects; 190.7110 Ultrafast non-linear optics; 280.1310 Atmospheric scattering; 290.1350 Backscattering

High-intensity ultrashort laser pulses propagating in air have been observed to self-collimate into long filaments over a distance substantially exceeding the Rayleigh length.¹ Such light filaments provide long interaction paths, leading to an ultrabroadband continuum from UV to IR.²⁻⁴ In the forward direction this supercontinuum exhibits conical emission with a spectacular pattern of concentric colored ring.^{5,6} The details of the mechanism describing the formation and the stability of the filaments remain still controversial. Self-channeling has been proposed to interpret filamentation as a result of a balance between self-focusing due to Kerr effect and combined effect of natural diffraction and refraction from a low-density plasma.^{1,5} First used for nanosecond pulses, the moving focus model has also been proposed to explain filamentation as well as conical emission in the fs regime.⁶ More recently, the spatial replenishment model⁷ has been proposed to describe the filamentation as a result of a dynamical guiding. Longitudinal effects on a pulse wave packet have also been reported such as pulse self-shortening⁸ and pulse-splitting.⁹

In recent experiments, supercontinuum emission and propagation of terawatt laser pulses have been observed over several kilometers in air using a lidar (Light Detection and Ranging) arrangement.^{10,11} These experiments, which opened new perspectives in atmospheric remote sensing, also brought out new questions about long distance propagation of high-power ultrashort laser pulses in the atmosphere and supercontinuum generation in air. A key issue is the origin and the underlying physical processes of the white-light detected at very large distances, *i.e.* either *in-situ* backward emission from remote-located

filaments or subsequent Rayleigh-Mie backscattering of white-light generated by filaments at shorter distances in the forward direction.

In this Letter we show for the first time, that laser-generated non-linear processes enhance the supercontinuum emission from a filament in the backward direction as compared to linear scattering. This backward emission is interpreted as a backscattering process onto a laser-induced longitudinal Kerr/plasma refractive-index gradient. The contribution of this self-induced nonlinear scattering in the near-backscattering is estimated compared to linear Rayleigh-Mie scattering.

The experimental set-up used to measure the angular dependence of the supercontinuum emitted by a filament in air was based on a Chirped Pulse Amplification (CPA) femtosecond laser system providing 6 mJ in 120 fs at 810 nm. The 12 mm-diameter output beam was slightly focused by a spherical mirror of 10 m radius of curvature. The beam propagated in free space over 80 meters after the investigated region (1.5 meter downstream from the geometrical focus). The incident beam propagation direction was considered as the forward scattering direction and defined as $\theta = 0^\circ$ (see Fig. 1). The supercontinuum emitted by the filament was collected by a 6 mm-diameter liquid optical fiber with a restricted field of view of 0.86 degrees using a non transparent guiding tube. The overlap between the field of view of the detection system and the filament (and hence the signal) is proportional to $1/\sin(\theta)$. This overlap function has to be accounted for comparing with the Rayleigh-Mie theory. The fiber was mounted onto a stepper-motor driven goniometer to measure the angular dependence

between $\theta = 5^\circ$ and 176.5° . In most of the experiments, the fiber transmitted the collected light to a photomultiplier tube (PMT) through a blue-green color filter, which rejected the fundamental and transmitted the 350 nm to 600 nm region. The atmosphere in the investigated region was controlled using a hood able to generate a dust free laminar air flow.

The experimental setup used to quantify the contribution of elastic Rayleigh-Mie scattering was identical except for the excitation laser beam. Since the linear processes have to be investigated in the same blue-green spectral region as the detected part of the supercontinuum, the output beam of the CPA laser was frequency-doubled in a KDP crystal and then focused by the spherical mirror. The second harmonic at 405 nm was separated from the fundamental by a dichroic mirror ($\sim 200 \mu\text{J}$ after the dichroic mirror), which provided a low-intensity and linearly propagating blue beam. The divergence of this beam was 0.065° (half angle).

The results obtained for linear Rayleigh-Mie scattering are shown in figure 1. The raw data are divided by the geometric overlap function $1/\sin(\theta)$. The use of the laminar flow provided a dust free air, giving access to pure Rayleigh scattering. The experimental data (open triangles in the figure) reproduce very well the expected Rayleigh scattering angular pattern, for both *s*-plane (displayed from 0 to 180°) and *p*-plane (from 180 to 360°) polarizations. Notice that the angular distribution could not be measured in the near forward direction because of the directly incoming laser beam. These pure Rayleigh scattering measurements constituted our reference calibration for the whole experimental detection system. The solid circles in figure 1 display the results for an atmosphere containing aerosol particles (laminar flow off). The angular distributions are thus representative of the combination of Rayleigh scattering on air molecules and Mie scattering on dust particles.

The angular distributions of the supercontinuum emitted by a filament was measured. With pulses of 50 GW peak power at 810 nm, a single filament started slightly before the geometrical focal point with conical emission, which had a divergence of 0.12° (half angle) for its outer ring in agreement with former observations.^{5,6} The obtained angular distributions are shown in figure 2 for both clean- (pure molecular-) and aerosol containing-atmospheres. In view of nonlinear lidar applications^{10,11}, which imply the extinction-to-backscattering ratio (α/β),¹² we need to compare the shape of the angular patterns, rather than absolute intensities, of linear and nonlinear signals. Therefore we arbitrarily normalized the linear (Rayleigh-Mie) and the nonlinear signals to the same intensity at 90° in each polarization plane. A remarkable result is that the supercontinuum emission from the filament shows a strong enhancement (factor of 2) in the near-

backward direction (176.5°) compared to Rayleigh-Mie scattering. The intensity rises very steeply in the near-backward direction, which leads to extrapolate an even much stronger enhancements at 180° . These measurements demonstrate for the first time that a self-generated backward enhancement occurs within the filament. And this discovery implies that the supercontinuum detected in the backward direction in a white-light lidar experiment is not only the result of linear Rayleigh-Mie backscattering but is also contributed by the nonlinear backscattering. The standard deviation was 20% in the near-backward direction and 10% in the transverse direction. The fact that a similar enhancement is observed in both clean and dust-containing air implies that aerosols do not contribute significantly to the non-linear backscattering enhancement.

Compared to elastic scattering, the non-linear scattering contribution is thus of the same order of magnitude at 176.5° . We interpret this non-linear backscattering enhancement as a consequence of a laser-induced longitudinal refractive-index gradient. Such a longitudinal gradient can occur in a dynamic guided structure,^{7,13,14} in which the filament diameter, and hence the intensity, undergo short-scale oscillations. The leading portion of the pulse "prints" a spatial refractive-index oscillation as its intensity varies. The trailing portion of the pulse is then partially reflected on this inhomogeneity. The order of magnitude of index changes in our experimental conditions is estimated to be 10^{-5} using the nonlinear refractive index of the air¹⁵ and the measured plasma density.¹⁶ A rough estimation with the Fresnel formula, by assuming a step-shaped refractive-index change, yields an upper limit for the self-reflection factor of 10^{-5} . This value is much larger than the Rayleigh backscattering efficiency of 2.5×10^{-7} in our experimental conditions in the blue-green band (calculated with a 50 cm long scattering volume, a 0.1 sr detection solid angle, and a Rayleigh backscattering coefficient $\beta = 4.9 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ at 405 nm ¹²). This estimated value is also 2 order of magnitude higher than the experimentally observed value at 176.5° . This suggests a much larger nonlinear self-reflection coefficient at 180° .

The spectral dependence of the supercontinuum angular profile has also been investigated (in an aerosol-rich air) with a band-passe filter between 600 nm and 650 nm. In figure 3, the obtained results are compared to the blue-green data. We can first notice that in the red band, the forward peak is much narrower than in the blue-green region. This can be explained by the angular dispersion in conical emission: the radius of color rings decreases with increasing wavelength.⁵ In these plots, data were normalized in each polarization plane to get an identical signal in the near-backward direction for both spectral bands. This representation shows that for the same near-backward signal, scattering around 90° decreases in the red band. This behavior is easily

explained by the decrease of the efficiency of both Rayleigh and Mie scatterings when the wavelength increases. This observation implies that the relative importance of the nonlinear self-reflection contribution over linear Rayleigh-Mie scattering increases for longer wavelengths. This statement has very important implications for lidar measurements in the mid- and far- infrared, where Rayleigh-Mie scattering dramatically decreases. We may expect that nonlinear self-reflection then widely dominates elastic backscattering and allows infrared lidar measurements at larger distances.

In conclusion, we have demonstrated that the supercontinuum emitted by a filament is enhanced in the backward direction compared to linear Rayleigh-Mie scattering. This enhancement is interpreted as scattering onto a longitudinal refractive-index gradient induced by the laser pulse itself. Measurements in two different spectral regions show an increasing contribution of the non-linear backscattering with respect to the linear Rayleigh-Mie scattering for longer wavelengths. The results presented in this Letter have strong implications for lidar applications based on high-intensity femtosecond laser pulses.

Acknowledgements

The present work has been performed within the framework of the joint french-german Teramobile project, co-financed by the DFG and CNRS. We would like to acknowledge Stefan Dusterer and Falk Ronneberger for their valuable assistance in a part of this work.

References:

1. A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995).
2. P.B. Corkum, C. Rolland, and T. Srinivasan-Rao, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2268 (1986).
3. Hajime Nishioka, Wataru Odajima, Ken-ichi Ueda, and Hiroshi Takuma, *Opt. Lett.* **20**, 2505 (1995).
4. J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J.P. Wolf, Y.B. André, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, H. Wille, L. Wöste, *Opt. Lett.*, in press (2000).
5. E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B.S. Prade, M.A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz, *Opt. Lett.* **21**, 62 (1996).
6. A. Brodeur, C.Y. Chien, F. A. Ilkov, S.L. Chin, O.G. Kosareva, and V. P. Kandidov, *Opt. Lett.* **22**, 304 (1997). O.G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C.Y. Chien, and S.L. Chin, *Opt. Lett.* **22**, 1332 (1997).
7. M. Mlejnek, E.M. Wright, and J.V. Moloney, *Opt. Lett.* **23**, 382 (1998).

8. J.H. Marburger and W.G. Wagner, *IEEE J. Quantum. Electron.*, **QE-3**, 415 (1967); G.L. McAllister, J.H. Marburger, and L.G. DeShazer, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1648 (1968).
9. J.K. Ranka, R.W. Schirmer, and A.L. Gaeta, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3783 (1996).
10. L. Wöste, C. Wedekind, H. Wille, P. Rairoux, B. Stein S. Nikolov, Chr. Werner, S. Niedermeier, F. Ronneberger, H. Schillinger, R. Sauerbrey, *Laser und Optoelektronik* **29**, 51 (1997).
11. P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wedekind, H. Wille, L. Wöste: *Appl. Phys. B*, in press (2000).
12. R.M. Measures, "Laser Remote Sensing", Krieger Publishing Company, Malabar, Florida (1992).
13. N. Aközbek and C.M. Bowden, A. Talebpour and S.L. Chin, *Phys. Rev. E* **61**, 4540 (2000).
14. J. Kasparian, R. Sauerbrey, S. L. Chin, "Dotted filaments generated by high-power laser pulses in air", in preparation.
15. C.H. Lin, J.P. Heritage, T.K. Gustafson, R.Y. Chiao, and J.P. McTague, *Phys. Rev. A* **13**, 813 (1976).
16. H. Schillinger, R. Sauerbrey, *Appl. Phys. B* **68**, 753 (1999); B. La Fontaine, F. Vidal, Z. Jiang, C. Y. Chien, D. Comtois, A. Desparois, T. W. Johnston, J.C. Kieffer, H. Pépin, and H.P. Mercure, *Phys. Plasmas* **6**, 1615 (1999); A.S. Tzortzakis, B. Prade; M. Franco, A. Mysyrowicz, *Opt. Commun.* **181**, 123, (2000).

Figure Captions:

Fig. 1 Experimental setup and angular distributions of linear scattering from a low-energy blue beam. Solid circles: dusty air; open triangles: clean air. The clean air data are fitted with Rayleigh distribution (solid lines).

Fig. 2 Angular distributions of supercontinuum scattered from a filament detected in blue-green band compared to linear scattering, (a) clean air and (b) dusty air. In clean air and the s -plane, the linear data is fitted and extrapolated by Rayleigh distribution ($1/\sin(\theta)$).

Fig. 3 Angular distributions of supercontinuum scattered from a filament detected in the red band compared to the blue-green data.

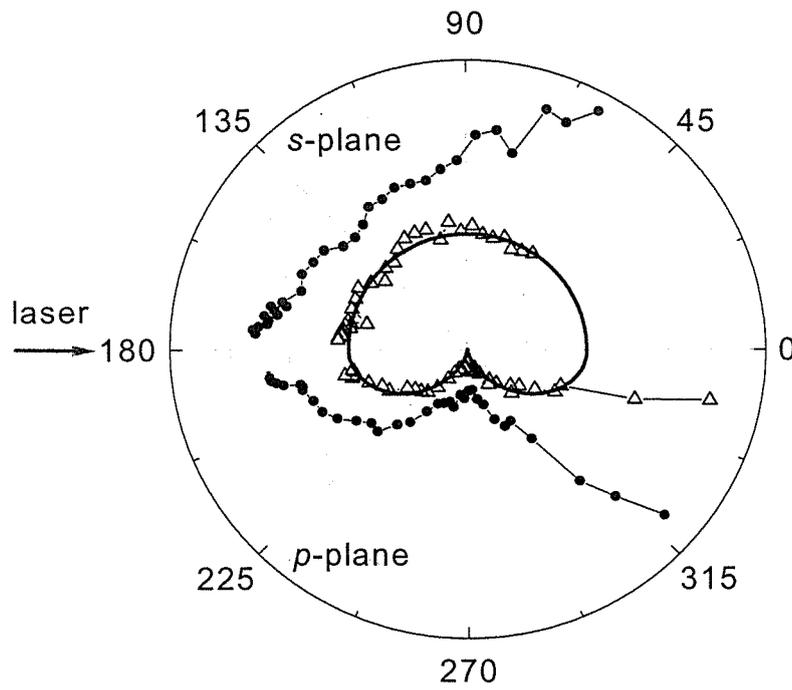
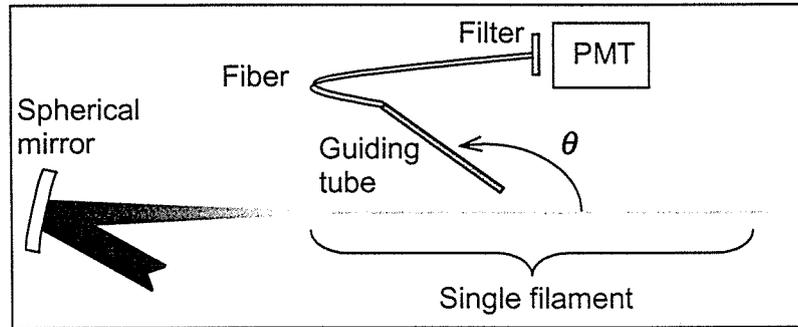


Fig. 1

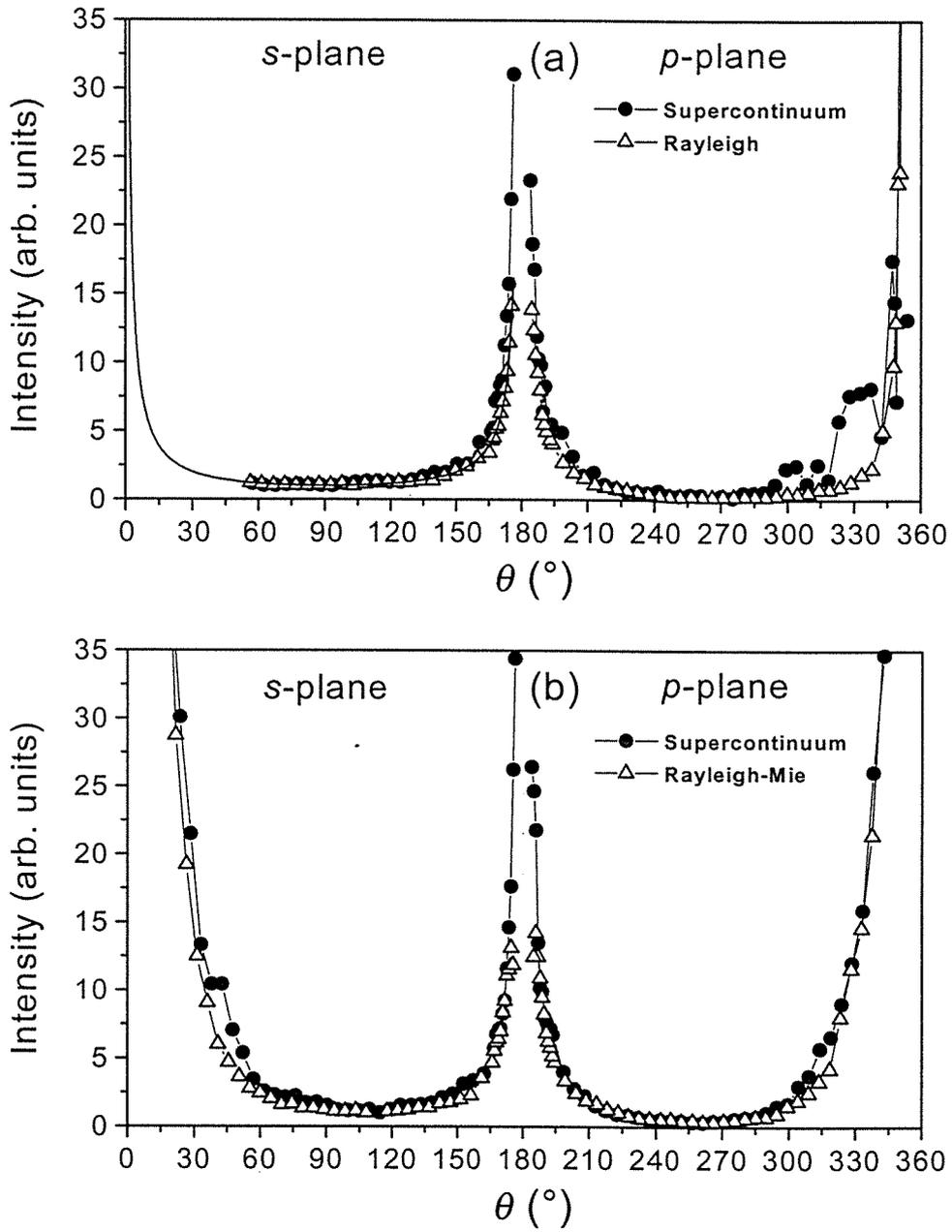


Fig. 2

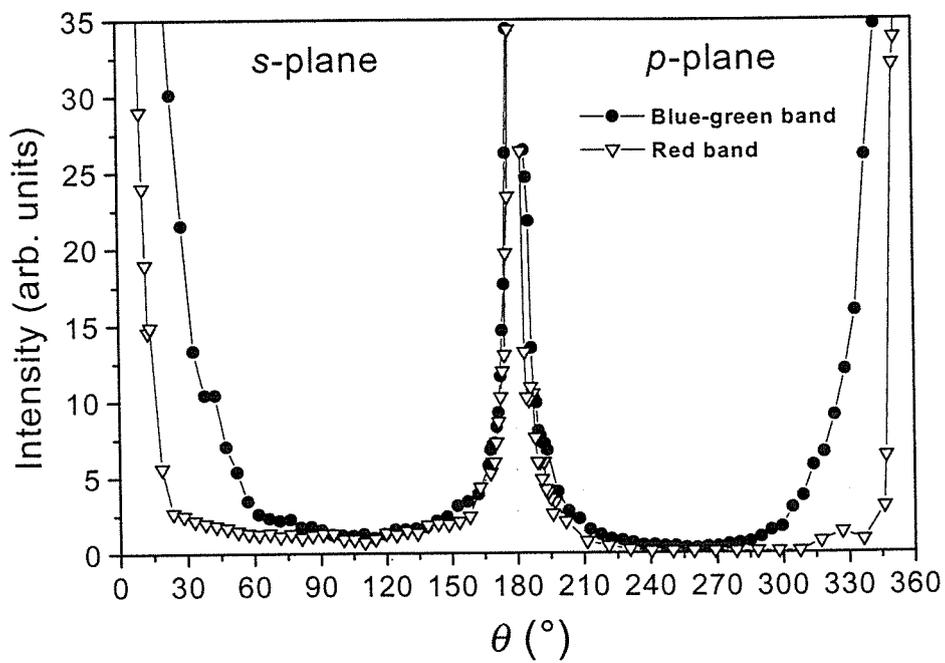


Fig. 3

