



HAL
open science

Spectroscopie Raman et Rayleigh stimulie d'atomes refroidis par laser : dynamique des mélasses optiques unidimensionnelles

Jean-Yves Courtois

► **To cite this version:**

Jean-Yves Courtois. Spectroscopie Raman et Rayleigh stimulie d'atomes refroidis par laser : dynamique des mélasses optiques unidimensionnelles. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Ecole Polytechnique X, 1993. Français. NNT: . tel-00011887

HAL Id: tel-00011887

<https://pastel.hal.science/tel-00011887>

Submitted on 9 Mar 2006

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

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



**DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE**

THÈSE DE DOCTORAT DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Physique Quantique



présentée par

Jean-Yves COURTOIS

pour obtenir le titre de
Docteur de l'École Polytechnique

Sujet de la thèse :

**SPECTROSCOPIE RAMAN ET RAYLEIGH STIMULÉE
D'ATOMES REFROIDIS PAR LASER
DYNAMIQUE DES MÉLASSES OPTIQUES UNIDIMENSIONNELLES**

Soutenue le 14 Mai 1993 devant le jury composé de :

M. C. COHEN-TANNOUJJI	Président
M. N. BLOEMBERGEN	Examineur
M. C. BORDÉ	Examineur
M. A. ASPECT	Examineur
M. J.-P. HUIGNARD	Rapporteur
M. J.-L. LE GOUËT	Rapporteur
M. G. GRYNBERG	Directeur de thèse

Concentrant tes efforts, sauras-tu reconnaître
Sous lequel des Dieux je t'ai fait apparaître
Ainsi que m'excuser d'avoir un peu joué
Avec ta fonction en l'Olympe occupée

Yos



**DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE**

THÈSE DE DOCTORAT DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Physique Quantique



présentée par

Jean-Yves COURTOIS

pour obtenir le titre de
Docteur de l'École Polytechnique

Sujet de la thèse :

**SPECTROSCOPIE RAMAN ET RAYLEIGH STIMULÉE
D'ATOMES REFROIDIS PAR LASER
DYNAMIQUE DES MÉLASSES OPTIQUES UNIDIMENSIONNELLES**

Soutenue le 14 Mai 1993 devant le jury composé de :

M. C. COHEN-TANNOUJJI	Président
M. N. BLOEMBERGEN	Examineur
M. C. BORDÉ	Examineur
M. A. ASPECT	Examineur
M. J.-P. HUIGNARD	Rapporteur
M. J.-L. LE GOUËT	Rapporteur
M. G. GRYNBERG	Directeur de thèse

*A Valérie.
A mes parents.*

“La conquête du superflu donne une excitation spirituelle plus grande que la conquête du nécessaire. L’homme est une création du désir, non pas une création du besoin.”

Gaston Bachelard (1884-1962).

La psychanalyse du feu.

Gratitude

Sur l'invite d'Hermès par Zeus entérinée
Au sommet de l'Olympe je fus installé
De glacials corpuscules on me donna mission
D'extraire sans relâche toute l'information

Honoré par autant de confiance divine
Mes efforts furent grands pour m'en affirmer digne
Mais cent fois cette tâche trop rude eût été
Si des Dieux bienveillants ne m'eussent point aidé

Ô Phœbos Apollon dont les pensées célestes
Illuminent uniment et la Science et le reste
Tes oracles sans faille par le monde prisés
M'auront enthousiasmé éclairé et formé

Ô Hermès dont l'astuce est l'arme redoutable
J'espère avoir été un disciple acceptable
Mais comment sans faillir chaque jour affronter
Ton intuition subtile et ta prolixité

Ô jovial Dionysos dont l'affabilité
Sombre bien quelquefois dans l'instabilité
Mes premières pensées te doivent assurément
Leur orientation et leur alignement

Ô Castor et Pollux sans vos expériences
Bien arides eussent été les chiffres de la Science
Par l'adresse magique de vos doigts ailés
Le voile des secrets plusieurs fois fut levé

Ô brave Ephaestos dont l'ingéniosité
Dispute au dévouement la première qualité
Admirable pongiste toi seul trouve normal
Que de rendre service sans renvoyer la balle

Grâce à vous Dieux puissants mon étude s'achève
Il me faut donc enfin avant de signer trêve
Rendre hommage aux héros et sans être exhaustif
Aux naïades aux satyres aux sujets de Sisyphe

Tout en haut de l'Olympe au-dessus des nuées
Dominant sans partage les divinités
Sur le monde des Sciences imposent leur sagesse
Reléguant tout rival au tréfonds de l'Hadès

Et moi simple mortel qui vénère les Dieux
De peur d'être ébloui vais me séparer d'eux
Jamais je n'oublierai le goût de l'Ambroisie
Jamais je ne saurai assez leur dire Merci !

Jean-Yves Courtois

TABLE DES MATIÈRES

<i>Introduction générale</i>	1
------------------------------------	---

I DIFFUSION RAMAN STIMULÉE

I.1.	Introduction : bref historique	13
I.2.	Diffusion Raman spontanée	15
I.3.	Diffusion Raman stimulée	16
I.4.	Diffusion Raman stimulée dans les milieux atomiques dilués	19
I.4.1.	Généralités	19
I.4.2.	Résonances Raman stimulées dans une vapeur atomique	22
I.4.3.	Transitions Raman stimulées entre états appartenant à un continuum d'énergie : résonance Raman induite par le recul	28
I.5.	Conclusion	31

ANNEXE A.I — FORMULE DE KRAMERS-HEISENBERG

A.I.1.	Présentation du problème.....	35
A.I.2.	Calcul de l'amplitude de diffusion.....	36
A.I.3.	Calcul de la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée : Formule de Kramers-Heisenberg.....	37

II DIFFUSION RAYLEIGH STIMULÉE

II.1.	Introduction	41
II.2.	Caractérisation des résonances Rayleigh stimulées	43
II.2.1.	Du processus de relaxation à la résonance Rayleigh stimulée.....	44
II.2.2.	Modes propres d'évolution et spectres Rayleigh - <i>a. Position du problème. b. Caractéristiques dynamiques du milieu en l'absence de sonde. c. Excitation dynamique du système diffuseur par l'onde sonde. d. Allure du spectre Rayleigh</i>	46
II.2.3.	Classification des différents effets Rayleigh stimulés.....	50
II.3.	Diffusion Rayleigh stimulée dans les milieux moléculaires	52
II.3.1.	Effet "Rayleigh-wing" stimulé.....	52
II.3.2.	Effet "Rayleigh" stimulé - <i>a. Dispositif expérimental. b. Processus de relaxation. c. Effet Rayleigh électrostrictif stimulé. d. Effet Rayleigh thermodiffusif stimulé</i>	56
II.4.	Diffusion Rayleigh dans les vapeurs atomiques	62
II.4.1.	Effet Rayleigh stimulé des atomes à deux niveaux - <i>a. Approche modale par la méthode de l'atome habillé. b. Interprétation élémentaire de la résonance Rayleigh des atomes à deux niveaux par la théorie de la diffusion</i>	63
II.4.2.	Cas d'un atome à plusieurs niveaux - <i>a. Cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. b. Généralisation aux cas d'autres transitions et géométries d'interaction</i>	75
II.4.3.	Résonance Raman induite par le recul.....	82
II.5.	Conclusion	86

III

SPECTROSCOPIE DES MÉLASSES

OPTIQUES 1D LINLLIN

III.1. Introduction	89
III.2. Rappels : le mécanisme de refroidissement “Sisyphé”	90
III.2.1. État interne d’un atome au repos	90
III.2.2. Cas d’un atome en mouvement : effet “Sisyphé”.....	92
III.3. Quantification des degrés de liberté externes	94
III.4. Résultats expérimentaux	100
III.5. Influence de la localisation atomique sur les propriétés dynamiques de la mélasse	104
III.6. Spectroscopie Raman de la mélasse optique	110
III.7. Spectroscopie Rayleigh de la mélasse optique	114
III.7.1. Modes propres d’évolution des populations - <i>a. Propriétés générales. b. Configuration de polarisation \parallel. c. Configuration de polarisation \perp. d. Conclusion</i>	115
III.7.2. Configuration de polarisation \parallel - <i>a. Modification du milieu par l’onde sonde. b. Mécanisme de diffraction des ondes pompes. c. Allure du spectre de transmission. d. Caractéristiques de l’effet Rayleigh stimulé</i>	139
III.7.3. Configuration de polarisation \perp - <i>a. Modification du milieu par l’onde sonde. b. Mécanisme de diffraction des ondes pompes. c. Allure du spectre de transmission. d. Caractéristiques de l’effet Rayleigh stimulé</i>	159
III.8. Cas des transitions atomiques de moment cinétique entier	178
III.8.1. Dépendance des populations des niveaux vibrationnels en fonction de la profondeur de potentiel - <i>a. Cas d’une transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$. b. Cas d’une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$</i>	178

III.8.2.	Spectroscopie Rayleigh dans la configuration de polarisation II - <i>a. Modification du milieu par l'onde sonde. b. Mécanisme de diffraction des ondes pompes. c. Allure du spectre de transmission. d. Phénomène de renversement de la résonance Rayleigh stimulée. e. Caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé.....</i>	193
III.9.	Conclusion	207

ANNEXE A.III — PROPRIÉTÉS DE SYMÉTRIE DES
EXPÉRIENCES DE SPECTROSCOPIE POMPE-SONDE

A.III.1.	Introduction.....	211
A.III.2.	Propriétés de symétrie des mélasses 1D lin-Llin	212
A.III.2.1.	Généralités.....	212
A.III.2.2.	Cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$	213
A.III.2.3.	Cas d'une transition atomique de moment cinétique J_g entier	214
A.III.3.	Procédure de symétrisation des expériences pompe-sonde	216
A.III.3.1.	Généralités.....	216
A.III.3.2.	Cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$	218
A.III.3.3.	Cas d'une transition atomique de moment cinétique J_g entier	219

ANNEXE B.III — OBSERVABLES IMPLIQUÉES DANS LA DÉTECTION

B.III.1.	Introduction.....	225
B.III.2.	Décomposition de \wp sur la base standard des opérateurs tensoriels irréductibles	225
B.III.3.	Expression de \wp en fonction d'observables ayant une signification physique simple.....	226

ANNEXE C.III — DYNAMICS AND SPATIAL ORDER OF
COLD CESIUM ATOMS IN A PERIODIC OPTICAL POTENTIAL

C.III	P. Verkerk, B. Lounis, C. Salomon, C. Cohen-Tannoudji, J.-Y. Courtois et G. Grynberg, Phys. Rev. Lett. 68 , 3861 (1992).....	231
-------	--	-----

ANNEXE D.III — QUANTIZED ATOMIC MOTION IN
1D CESIUM MOLASSES WITH MAGNETIC FIELD

D.III	B. Lounis, P. Verkerk, J.-Y. Courtois, C. Salomon et G. Grynberg, Europhys. Lett. 21 , 13 (1993).....	237
-------	---	-----

ANNEXE E.III — PROBE TRANSMISSION IN 1D OPTICAL MOLASSES.
THEORY FOR LINEARLY CROSS-POLARIZED COOLING BEAMS

E.III J.-Y. Courtois et G. Grynberg, Phys. Rev. A **46**, 7060 (1992)..... 245

IV

SPECTROSCOPIE DES MÉLASSES OPTIQUES 1D $\sigma^+ - \sigma^-$

IV.1.	Introduction	267
IV.2.	Rappels : le mécanisme de refroidissement $\sigma^+ - \sigma^-$	268
IV.2.1.	Hamiltonien effectif et taux de pompage optique	268
IV.2.2.	État interne d'un atome au repos	271
IV.2.3.	État interne d'un atome en mouvement	271
IV.2.4.	Force et coefficient de diffusion en impulsion - <i>a. Force de refroidissement. b. Coefficient de diffusion en impulsion</i>	273
IV.3.	Résultats expérimentaux	276
IV.4.	Propriétés dynamiques de la mélasse optique	280
IV.4.1.	Taux de relaxation des variables internes.....	280
IV.4.2.	Taux de relaxation des variables externes	281
IV.5.	Analyse physique des spectres de transmission	283
IV.5.1.	Observables impliquées dans la réponse du milieu à l'excitation de la sonde - <i>a. Configuration de polarisation \parallel. b. Configuration de polarisation \perp</i>	284
IV.5.2.	Analyse des spectres de transmission dans la configuration de polarisation \parallel - <i>a. Processus Raman stimulés. b. Processus Rayleigh stimulés. c. Allure du spectre de transmission</i>	290
IV.5.3.	Analyse des spectres de transmission dans la configuration de polarisation \perp - <i>a. Processus Raman stimulés. b. Résonance Raman induite par le recul</i>	297
IV.6.	Principe d'un calcul quantitatif des spectres de transmission	301
IV.6.1.	Configuration de polarisation \parallel - <i>a. Résonances Raman stimulées. b. Résonance Rayleigh stimulée</i>	302

IV.6.2.	Configuration de polarisation \perp - <i>a. Origine de la modulation spatiale de densité. b. Équation d'évolution des cohérences externes. c. Résonance induite par le recul</i>	310	
IV.7.	Conclusion	314	
 ANNEXE A.IV — MEASUREMENT OF THE FRICTION COEFFICIENT IN 1D CORKSCREW OPTICAL MOLASSES BY STIMULATED RAYLEIGH SPECTROSCOPY			
A.IV	B. Lounis, J.-Y. Courtois, P. Verkerk, C. Salomon et G. Grynberg, Phys. Rev. Lett. 68 , 3029 (1992).....	317	
 ANNEXE B.IV — PROBE TRANSMISSION IN 1D OPTICAL MOLASSES. THEORY FOR CIRCULARLY CROSS-POLARIZED COOLING BEAMS			
B.IV	J.-Y. Courtois et G. Grynberg, Phys. Rev. A, accepté pour publication	323	
 <i>Conclusion générale</i>			385
 RAPPELS — ÉQUATION DU POMPAGE OPTIQUE. SPECTROSCOPIE POMPE-SONDE			
R.1.	Introduction.....	395	
R.2.	Équations de Bloch optiques généralisées.....	396	
R.3.	Réduction de l'équation pilote dans le niveau fondamental	398	
	R.3.1. Cas des vapeurs atomiques.....	398	
	R.3.2. Cas des mélasses optiques.....	401	
R.4.	Résolution perturbative de l'équation du pompage optique	404	
	R.4.1. Caractéristiques dynamiques du milieu atomique en présence des seules ondes pompes.....	404	
	R.4.2. Calcul de la modification de la matrice densité par l'onde sonde.....	405	
R.5.	Spectres de transmission et de conjugaison de phase.....	406	
 <i>Liste des références citées</i>			411
 <i>Index des notations</i>			417

I N T R O D U C T I O N G É N É R A L E

“L’homme n’est point né pour résoudre les problèmes du monde, mais pour chercher où le problème commence, afin de se tenir dans les limites de l’intelligibilité.”

Wolfgang Goethe (1749-1825). Conversation avec Eckermann. 15 Octobre 1825.

Depuis 1991, la spectroscopie Raman et Rayleigh stimulée des mélasses optiques (c'est-à-dire des atomes "refroidis" par suite de leur interaction avec des faisceaux lumineux incidents) est un domaine très actif de la physique du ralentissement d'atomes neutres par laser et de l'optique non linéaire. Récemment, des études menées dans des géométries à une seule dimension d'espace [Ver92], [Lou92], qui rendent possible une confrontation directe entre théorie et expériences, ont conduit à plusieurs avancées décisives dans ce nouveau champ de recherche : observation de niveaux d'énergie quantifiés pour le mouvement du centre de masse atomique, tests des mécanismes de refroidissement sub-Doppler impliquant une forte corrélation entre les degrés de liberté atomiques internes et externes (position ou vitesse), première mesure du coefficient de friction de la force de refroidissement dans une mélasse optique, etc... Le but de cette thèse est de donner une interprétation physique de la structure des spectres Raman et Rayleigh stimulés observés dans de telles expériences. Dans cette introduction, nous présentons tout d'abord un résumé de l'histoire (récente) de la spectroscopie non linéaire des mélasses optiques. Nous mettons ensuite l'accent sur l'originalité des propriétés non linéaires des atomes refroidis par laser, qui réside dans l'intime corrélation entre degrés de liberté atomiques internes et externes. Nous terminons en exposant l'organisation du mémoire.

Bref historique

Au cours des quelques années qui ont suivi la découverte des nouveaux mécanismes de refroidissement sub-Doppler [Dal89]-[Ung89] et la réalisation du premier piège magnéto-optique [Raa87] sur le principe proposé par J. Dalibard, la maîtrise grandissante des techniques de ralentissement et de piégeage des atomes neutres par laser permet d'élever les atomes froids du statut d'objet exotique à celui d'outil original et de grande potentialité pour tous les domaines de la physique quantique. Les fortes densités atomiques ($\approx 10^{12}$ atomes.cm⁻³) et les très basses températures (≈ 10 μ K) atteintes dans les pièges magnéto-optiques ouvrirent ainsi un champ

-
- [Ver92] P. Verkerk, B. Lounis, C. Salomon, C. Cohen-Tannoudji, J.-Y. Courtois et G. Grynberg, Phys. Rev. Lett. **68**, 3861 (1992). Cette référence se trouve en annexe C.III de ce mémoire.
- [Lou92] B. Lounis, J.-Y. Courtois, P. Verkerk, C. Salomon et G. Grynberg, Phys. Rev. Lett. **68**, 3029 (1992). Cette référence se trouve en annexe A.IV de ce mémoire.
- [Dal89] J. Dalibard et C. Cohen-Tannoudji, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 2023 (1989).
- [Ung89] P. J. Ungar, D. S. Weiss, E. Riis et S. Chu, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 2058 (1989).
- [Raa87] E. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu et D. Pritchard, Phys. Rev. Lett. **59**, 2631 (1987) ; T. Walker, D. Sesko et C. Wieman, Phys. Rev. Lett. **64**, 408 (1990)

d'investigation nouveau et très stimulant pour l'optique non linéaire. En effet, la largeur Doppler des mélasses optiques étant considérablement réduite par rapport au cas des vapeurs atomiques usuelles, il devint possible de travailler à des désaccords à résonance égaux à seulement quelques largeurs naturelles du niveau excité, afin d'exploiter la forte non linéarité de l'interaction atome-rayonnement sans être limité par le phénomène d'absorption. C'est avec cette motivation que les premières expériences de spectroscopie non linéaire s'engagèrent au laboratoire dans les équipes de G. Grynberg et de C. Cohen-Tannoudji, ainsi qu'à CalTech (USA) dans le groupe de H. J. Kimble. Presque simultanément, les deux groupes publièrent le premier spectre de transmission d'une onde sonde à travers le nuage d'atomes froids d'un piège magnéto-optique [Gri91]-[Tab91], marquant ainsi le point de départ d'une histoire aujourd'hui forte de nombreuses découvertes. Ces premières expériences donnèrent des indices de l'existence d'un effet Raman stimulé entre sous-niveaux Zeeman du niveau fondamental ayant des populations et des déplacements lumineux différents (en accord avec les modèles théoriques du refroidissement sub-Doppler). Toutefois, bien qu'étonnamment satisfaisante, la comparaison entre les résultats expérimentaux obtenus en utilisant une mélasse optique tridimensionnelle (3D), et les prévisions théoriques concernant une seule dimension d'espace et des atomes immobiles, ne pouvait constituer un test fiable des nouveaux mécanismes de refroidissement sub-Doppler, qui par ailleurs étaient validés de façon seulement qualitative par les mesures de température dans des mélasses 3D [Chu85]. Il fut alors décidé au laboratoire de répéter ces expériences de spectroscopie non linéaire dans des mélasses optiques à une seule dimension d'espace (1D), obtenues de manière transitoire après une phase de chargement d'un piège magnéto-optique, puis extinction de ce piège et irradiation du nuage d'atomes froids par deux ondes lasers contrapropagatives, jouant simultanément le rôle de faisceaux de refroidissement et de pompes pour les processus non linéaires. Les signaux étudiés furent d'une part la transmission d'une onde sonde, et d'autre part la conjugaison de phase vers l'arrière (Fig. Intro-1).

Les premières expériences de ce type concernèrent le cas des mélasses optiques 1D obtenues à l'aide de faisceaux de refroidissement ayant des polarisations linéaires orthogonales (mélasses $\text{lin} \perp \text{lin}$), et associées au mécanisme de refroidissement "Sisyphé" [Dal89], [Cas91a]. Elles donnèrent lieu à la première observation [Ver92] de transitions Raman stimulées entre niveaux de vibration quantifiés des atomes au fond des puits du potentiel associé aux déplacements lumineux. Ce résultat fut en fait une immense surprise car des raies Raman très fines et bien

[Gri91] D. Grison, B. Lounis, C. Salomon, J.-Y. Courtois et G. Grynberg, *Europhys. Lett.* **15**, 149 (1991).

[Tab91] J. W. R. Tabosa, G. Chen, Z. Hu, R. B. Lee et H. J. Kimble, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3245 (1991).

[Chu85] S. Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, A. Cable et A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 48 (1985) ; *P. Lett.*, R. Watts, C. Westbrook, W. D. Phillips, P. Gould et H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 169 (1988) ; C. Salomon, J. Dalibard, W. Phillips, A. Clairon et S. Guellati, *Europhys. Lett.* **12**, 683 (1990).

[Cas91a] Y. Castin et J. Dalibard, *Europhys. Lett.* **14**, 761 (1991).

résolues furent observées là où un spectre large et sans structure était escompté. Il fallut quelques mois d'études expérimentales et théoriques pour s'assurer que d'une part le spectre observé était bien associé à la vibration de l'atome, et d'autre part comprendre pourquoi les raies Raman avaient une largeur plus étroite que la largeur naturellement associée aux processus de pompage optique, et cela par plus d'un ordre de grandeur. Comme nous l'avons montré [Cou92], les niveaux de vibration les plus profonds présentent un allongement considérable de la durée de vie en raison de la forte localisation des fonctions d'onde atomiques sur une distance inférieure au dixième de la longueur d'onde optique. L'existence d'une structure Rayleigh stimulée au centre des spectres de transmission donna par ailleurs accès à la dynamique des populations des niveaux de vibration [Ver92]. Les caractéristiques des spectres furent interprétées théoriquement au moyen d'un calcul entièrement quantique [Cou92] basé sur le formalisme des bandes [Cas91a], et permirent une validation de la théorie du refroidissement "Sisyphé" [Dal89]-[Ung89], [Cas91a].

Ces expériences furent ensuite étendues au cas d'une mélasse optique 1D obtenue au moyen de deux ondes de refroidissement ayant la même polarisation circulaire, en présence d'un champ magnétique statique transverse (mélasse de type MASE) [Lou93a]. Les caractéristiques des raies Raman stimulées permirent de prouver également la quantification des degrés de liberté externes des atomes au fond des puits du potentiel associé aux déplacements lumineux et au champ magnétique.

Une seconde série d'expériences fut enfin consacrée au cas des mélasses 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ (ou "tire-bouchon") correspondant à des faisceaux de refroidissement ayant des polarisations circulaires orthogonales. L'existence de raies Raman stimulées démontra cette fois sans ambiguïté l'existence de sous-niveaux Zeeman ayant des déplacements lumineux et des populations différentes, confirmant ainsi l'une des bases de la théorie du refroidissement $\sigma^+ - \sigma^-$ [Dal89][Ung89]. La présence d'une résonance Rayleigh stimulée ayant une largeur proportionnelle au coefficient de friction de la force de refroidissement fut également mise en évidence [Lou92], donnant ainsi pour la première fois un accès expérimental direct à cette caractéristique importante du processus de ralentissement [Dal89]-[Ung89]. L'accord entre les valeurs expérimentales et théoriques [Cas92] du coefficient de friction fut trouvé excellent (l'écart étant inférieur à 10%), et les spectres furent reproduits de façon très satisfaisante par un modèle semi-classique [Cou93].

[Cou92] J.-Y. Courtois et G. Grynberg, Phys. Rev. A **46**, 7060 (1992). Cette référence se trouve en annexe E.III de ce mémoire.

[Lou93a] B. Lounis, P. Verkerk, J.-Y. Courtois, C. Salomon et G. Grynberg, Europhys. Lett. **21**, 13 (1993). Cette référence se trouve en annexe D.III de ce mémoire.

[Cas92] Y. Castin, thèse de doctorat, Université Paris VI, Paris (1992).

[Cou93] J.-Y. Courtois et G. Grynberg, Phys. Rev. A, accepté pour publication. Cette référence se trouve en annexe B.IV de ce mémoire.

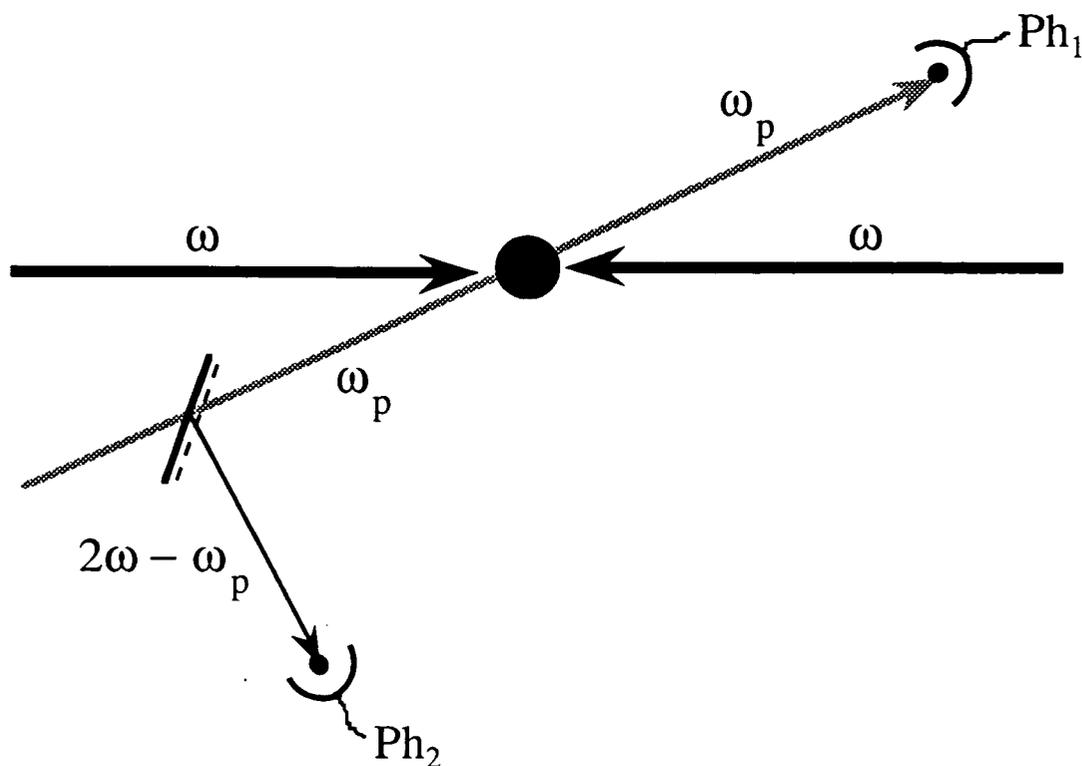


FIG. Intro-1 : Schéma d'une expérience de spectroscopie non linéaire pompes-sonde dans une mélasse optique à une dimension. Deux faisceaux lasers de refroidissement de fréquence ω se propagent en sens opposés à travers un nuage d'atomes froids, réalisant une mélasse optique 1D. Un faisceau sonde de faible intensité et de fréquence variable $\omega_p \approx \omega$ interagit avec le milieu atomique. Le spectre de transmission est obtenu par mesure à l'aide d'une photodiode Ph_1 de l'intensité de la sonde transmise à travers la mélasse en fonction de ω_p . Le spectre de conjugaison de phase vers l'arrière (signal de fréquence $2\omega - \omega_p$) est enregistré au moyen d'une lame séparatrice placée sur le trajet de l'onde sonde, et d'une photodiode Ph_2 .

Originalité des propriétés non linéaires des atomes froids

Commençons tout d'abord par citer quelques systèmes dans lesquels des résonances ayant des caractéristiques analogues apparaissent sur les spectres de transmission d'une onde sonde. Les résonances Raman observées dans le cas des mélasses lin \perp lin sont associées à des transitions entre des états quantiques différents pour le mouvement du centre de masse et sont à bien des égards voisines des résonances observées sur les excitons dans les puits quantiques [Che84]. Par exemple, il est bien connu dans ces systèmes que le confinement du mouvement du centre de masse conduit à une augmentation importante et résonnante des susceptibilités non linéaires, effet que nous avons également observé dans les mélasses optiques [Lou93a].

[Che84] D. S. Chemla, D. A. B. Miller, P. W. Smith, A. C. Gossard, et W. Wiegmann, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE20**, 265 (1984) ; voir également C. Weisbuch et B. Vinter, *Quantum Semiconductor Devices : Physics and Applications* (Academic, New York, 1991).

Les résonances Rayleigh stimulées des spectres de transmission à travers les mélasses optiques ont également des propriétés qui les rapprochent de celles observées dans les milieux photoréfractifs [Whi82] (et pour lesquelles la terminologie “mélange à deux ondes” est généralement utilisée au lieu de diffusion Rayleigh stimulée). Dans les deux cas, la lumière tend à privilégier des sites où les atomes dans un cas, les porteurs dans l’autre, sont piégés. Le mécanisme de formation des réseaux conduisant aux résonances et à l’amplification d’une onde sonde, tout comme les échelles de temps (de l’ordre de la ms) sont également très proches.

Il existe cependant une forte particularité des atomes refroidis par laser, et qui est liée à l’intime *corrélation entre degrés de liberté internes et externes* dans la réponse non linéaire des atomes. Cette caractéristique est inhérente au processus de ralentissement : d’une part la force exercée par les faisceaux lasers sur les atomes (pression de radiation et redistribution de photons) dépend fortement de l’état atomique interne, et d’autre part cet état est modifié de façon très sélective en position ou en vitesse par les ondes lasers de refroidissement (déplacements lumineux et pompage optique). Elle sous-tend toute la richesse et l’originalité du comportement non linéaire des mélasses optiques, mais aussi toute la complexité de leur modélisation théorique, qui requiert une description *globale* de l’évolution des degrés de liberté internes *et* externes des atomes sous l’action des champs lasers. Afin de mettre en évidence le lien entre ces corrélations et les propriétés non linéaires des atomes froids, nous concentrerons notre étude d’une part sur les mélasses $\text{lin}\perp\text{lin}$ qui constituent un cas de *couplage entre état interne et position* des atomes localisés au fond des puits du potentiel associé aux déplacements lumineux, et d’autre part sur les mélasses $\sigma^+ - \sigma^-$ qui correspondent quant à elles à un *couplage entre état interne et vitesse* atomiques.

Plan du mémoire

Afin de faire clairement ressortir les particularités des processus Raman et Rayleigh ayant lieu dans les mélasses optiques, il nous a paru indispensable de consacrer les deux premiers chapitres de ce mémoire au rappel de l’origine et des caractéristiques générales de ces effets, tout en mettant l’accent sur le cas des vapeurs atomiques. Les chapitres III et IV sont alors respectivement consacrés à l’étude des spectres Raman et Rayleigh des mélasses optiques 1D $\text{lin}\perp\text{lin}$ et $\sigma^+ - \sigma^-$.

Chapitre I : Présentation générale de l’effet Raman stimulé, et discussion de ses caractéristiques dans le cas des vapeur atomiques. Nous mettons en évidence l’existence de transitions Raman stimulées entre sous-niveaux Zeeman ayant des populations et des déplacements lumineux

[Whi82] J. D. White, M. Cronin-Golomb, B. Fisher et A. Yariv, Appl. Phys. Lett. **40**, 450 (1982) ; H. Rajhenbach et J.-P. Huignard, Opt. Lett. **10**, 137 (1985).

différents, qui se manifestent sur le spectre de transmission d'une onde sonde sous la forme de résonances lorentziennes en absorption et en amplification ayant une largeur de l'ordre du taux de pompage optique.

Chapitre II : Étude détaillée de l'effet Rayleigh stimulé (mélange à deux ondes). Cet effet est associé à l'excitation d'observables lentes dans le milieu diffuseur par l'action conjointe d'un champ pompe et d'une onde sonde. La diffraction du champ pompe sur ces observables, qui ne sont pas en phase avec l'excitation en raison du temps de réponse fini du système diffuseur, conduit à un transfert de puissance entre ondes pompe et sonde présentant un comportement résonnant lorsque la différence de fréquence entre les deux ondes est de l'ordre de l'inverse d'un temps de réponse du milieu. Une telle résonance, d'allure généralement dispersive, fournit donc des informations sur la *dynamique* du milieu diffuseur. Nous dégagons trois critères portant sur les caractéristiques du milieu diffuseur, du processus de relaxation intervenant dans ce milieu, et du mécanisme d'excitation du milieu par la sonde, permettant une classification de différents processus Rayleigh dont nous avons connaissance, tant dans les systèmes moléculaires qu'atomiques. Cette méthode de classification est d'une part utilisée dans le cas des milieux moléculaires denses, où l'on décrit successivement les effets "Rayleigh-wing" (lié à l'orientation de molécules anisotropes le long du champ électrique local), Rayleigh électrostrictif diffusif et Rayleigh thermodiffusif (dus à une modulation spatiale de la densité) ; et d'autre part dans le cas des vapeurs atomiques, où l'on distingue le cas des atomes à deux niveaux (pour lequel une interprétation de la résonance Rayleigh est donnée en termes d'interférence quantique entre processus de diffusion de photons), puis la situation des atomes possédant plusieurs sous-niveaux Zeeman dégénérés dans le niveau fondamental (où l'effet Rayleigh stimulé est lié au pompage optique et à la création d'observables atomiques).

Chapitre III : Étude des processus Raman et Rayleigh stimulés dans les mélasses optiques 1D lin_⊥lin. Nous considérons le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, et nous nous restreignons aux situations pour lesquelles la partie dissipative du couplage atome-lasers est négligeable devant la partie hamiltonienne (régime oscillant du refroidissement "Sisyphé"). Nous étudions les processus Raman stimulés entre niveaux vibrationnels quantifiés des atomes au fond des puits du potentiel associé aux déplacements lumineux, et nous mettons en évidence un phénomène d'allongement de la durée de vie des cohérences entre niveaux de vibration lié à la localisation des atomes (effet Lamb-Dicke). Des résonances Rayleigh stimulées très sensibles à la polarisation de la sonde sont également prédites au centre des spectres. Une interprétation de ces structures est donnée en termes de diffraction des ondes de refroidissement sur des réseaux de densité ou de magnétisation modulés temporellement par la sonde, et nous montrons que ces résonances donnent des informations sur les propriétés dynamiques du milieu, ainsi que sur l'ordre spatial de type

anti-ferromagnétique des atomes. Des indications sur le traitement de transitions atomiques de moment cinétique plus élevé sont données, et nous discutons plus particulièrement le cas de la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ du césium, où un processus de renversement de la résonance Rayleigh lié à une variation résonnante des populations des niveaux vibrationnels en fonction de la profondeur des puits de potentiel est prédit à la limite des grands désaccords à résonance.

Chapitre IV : Étude des processus Raman et Rayleigh stimulés dans les mélasses optiques 1D $\sigma^+ - \sigma^-$. Nous considérons le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$, et nous nous restreignons aux situations pour lesquelles la distribution stationnaire d'impulsion est contenue dans le domaine de linéarité de la force de refroidissement. Dans ces conditions, il est possible de décrire la dynamique des degrés de liberté externes de l'atome au moyen d'une équation de Fokker-Planck, après élimination adiabatique des variables atomiques internes. Nous étudions d'une part les processus Raman stimulés entre sous-niveaux Zeeman mettant en évidence l'existence de différences de populations et de déplacements lumineux dans l'état fondamental, et d'autre part les processus Rayleigh stimulés donnant accès aux temps de relaxation des variables externes. Nous envisageons deux cas de polarisation pour la sonde, selon que l'onde pompe se propageant dans la même direction a une polarisation circulaire identique ou opposée à celle de la sonde. Dans le premier cas, nous montrons que les résonances Raman ne subissent pas d'élargissement inhomogène. Il est également montré qu'une résonance Rayleigh apparaît sur les spectres, due à la modulation temporelle de la force de refroidissement par la sonde qui s'accompagne d'une modulation de la distribution d'impulsion atomique. Cette résonance a une largeur proportionnelle au coefficient de friction de la force de refroidissement en l'absence de sonde. Dans le second cas, nous mettons en évidence un processus d'élargissement inhomogène des résonances Raman, ainsi qu'une résonance centrale de type "Raman induite par le recul", ayant la forme d'une dérivée de gaussienne de largeur proportionnelle à la largeur Doppler de la mélasse.

Remarques d'ordre général

Le but premier de cette thèse est de donner une interprétation physique des spectres Raman et Rayleigh observés expérimentalement au cours de ce travail. Toutefois, nous présentons également quelques effets prévus par nos calculs et non observés à ce jour (variation résonnante des populations des niveaux de vibration pour les transitions de moment cinétique élevé, inversion du signe des structures Rayleigh stimulées, temps d'évolution très longs dans la limite des puits de potentiel peu profonds des mélasses lin \perp lin, ou encore résonance Raman induite par le recul dans une mélasse $\sigma^+ - \sigma^-$), mais susceptibles d'être mis en évidence expérimentalement dans un futur proche.

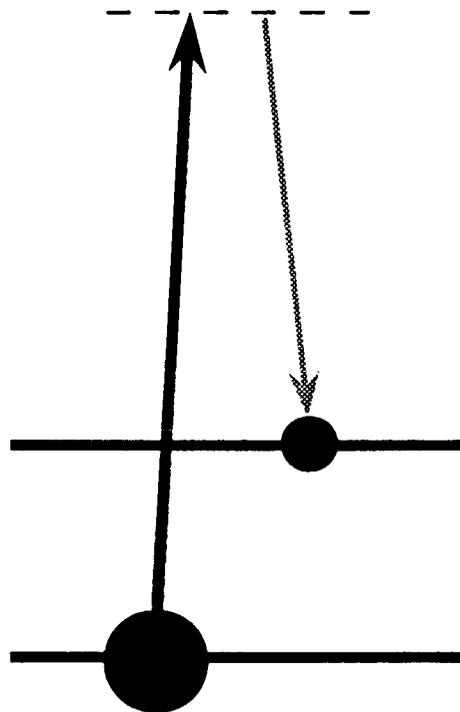
La méthode de calcul des spectres ayant fait l'objet de deux publications détaillées ([Cou92] et [Cou93]), nous avons pris le parti de nous concentrer ici uniquement sur les phénomènes physiques impliqués et de renvoyer les développements théoriques, lorsqu'ils sont nécessaires, en annexe des chapitres concernés. Dans le même esprit, nous avons rassemblé les résultats techniques importants concernant les équations d'évolution de la matrice densité en présence d'une onde sonde, et le calcul des signaux de transmission et de conjugaison de phase dans un chapitre intitulé "Rappels", auquel nous nous référerons largement tout au long des chapitres. Afin de mieux sérier les problèmes et de ne pas rendre ce mémoire inutilement long, nous avons également choisi de nous limiter à l'étude des spectres de transmission, l'analyse des spectres de conjugaison de phase pouvant être trouvée dans les articles [Lou93b], [Cou92] et [Cou93]. Une sélection de nos articles est jointe en annexe aux chapitres III et IV. On trouvera ainsi les références [Ver92], [Lou93a], et [Cou92] en annexes C.III, D.III, et E.III ; ainsi que [Lou92] et [Cou93] en annexes A.IV et B.IV.

Nous avons consigné en fin d'ouvrage un index de toutes les notations importantes employées dans ce mémoire. Elles sont classées par familles selon qu'elles décrivent des propriétés de l'atome, du rayonnement, de l'interaction atome-rayonnement, ou plus spécifiquement des mélasses optiques $\text{lin}\perp\text{lin}$ ou $\sigma^+-\sigma^-$. Les carrés des coefficients de Clebsch-Gordan des deux transitions les plus étudiées dans ce mémoire ($J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ et $J_g=1 \rightarrow J_e=2$) sont également joints à cet index.

[Lou93b] B. Lounis, P. Verkerk, C. Salomon, J.-Y. Courtois et G. Grynberg, *Nonlinear Opt.*, accepté pour publication.

C H A P I T R E I

D I F F U S I O N R A M A N S T I M U L É E



“Ce n’est pas dans la science qu’est le bonheur, mais dans l’acquisition de la science.”

Edgar Allan Poe (1809-1849). Œuvres complètes. Puissance de la parole.

1. Introduction : bref historique [Ray90]

Si le phénomène de diffusion *élastique* de la lumière était bien connu dès le début du siècle, grâce aux travaux de Lord Rayleigh [LRa71] et de J. J. Thomson [Rq.I-1], il fallut attendre les premiers développements de la théorie quantique, et en particulier les idées de Bohr sur les propriétés de l'absorption et de l'émission de la lumière par les atomes, pour que naisse l'idée d'une diffusion associée à un changement de longueur d'onde du rayonnement. L'existence du processus de diffusion *inélastique* de la lumière fut ainsi prédite pour la première fois en 1923 par Smekal [Sme23] à partir d'arguments de conservation de l'énergie. Cette idée fut reprise et développée par Kramers et Heisenberg [Kra25] qui, en utilisant le principe de correspondance, parvinrent à l'expression quantique exacte pour la section efficace de diffusion inélastique. Klein [Kle27] ébaucha une approche semi-classique et calcula, en utilisant la théorie des perturbations en représentation de Schrödinger, l'élément de matrice de l'opérateur dipôle électrique oscillant à la fréquence Stokes, qu'il porta ensuite dans la formule classique donnant l'énergie rayonnée par un dipôle pour obtenir l'intensité diffusée. La quantification du champ électromagnétique par Dirac [Dir27] et sa démonstration rigoureuse de la formule de Kramers-Heisenberg, furent suivies de la découverte théorique par Göppert-Mayer [Göp31] des processus stimulés à deux photons. Il est intéressant de noter que ce travail fut le premier à reconnaître la possibilité d'un effet Raman *stimulé*. Placzek [Pla34] résuma ces théories dans son traité sur la diffusion Raman, en présentant également pour la première fois une discussion du processus Raman en termes de polarisabilité non linéaire de la molécule. Toutefois, bien que mentionnant le travail de Göppert-Mayer, Placzek y considéra la diffusion inélastique comme étant incohérente, ignorant la possibilité d'une diffusion stimulée.

-
- [Ray90] M. G. Raymer et I. A. Walmsley, in *Progress in Optics*, Vol. 28, édité sous la direction scientifique de E. Wolf, North-Holland, Amsterdam (1990).
- [LRa71] Voir à ce propos la célèbre série d'articles discutant la couleur bleue du ciel : Lord Rayleigh, *Phil. Mag.* **XLI**, 274, 447 (1871) ; **XLVII** 375 (1899).
- [Rq.I-1] Les travaux de J. J. Thomson sur la diffusion élastique des rayons X par des particules libres datent des années 1900.
- [Sme23] A. Smekal, *Naturwissenschaften* **11**, 873 (1923).
- [Kra25] H. A. Kramers et W. Heisenberg, *Z. Phys.* **31**, 681 (1925).
- [Kle27] O. Klein, *Z. Phys.* **41**, 407 (1927).
- [Göp31] M. Göppert-Mayer, *Ann. Phys. (Germany)* **9**, 273 (1931).
- [Pla34] G. Placzek, *The Rayleigh and Raman scattering*, in *Handbuch der Radiologie*, Band VI, édité sous la direction scientifique de E. Marx (Akademische, Leipzig) [UCRL translation number 256 (USAE report)] (1934).

Raman et Krishnan [Ram28] observèrent pour la première fois le phénomène de “rayonnement modifié”, ou diffusion Raman spontanée [Rq.I-2]. Bien entendu, la source de pompage (la lumière du soleil) était bien trop faible pour produire le moindre gain à la fréquence Stokes. Ils interprétèrent ce phénomène comme étant dû à “l’effet des fluctuations (des atomes) autour de leur état normal”. Presque simultanément, Landsberg et Mandel’stamm [Lan28] découvrirent une diffusion similaire dans des solides. Au cours des deux années qui suivirent, cet effet fut catalogué dans de nombreux liquides et gaz différents. En leur temps, ces expériences furent considérées comme des preuves de la théorie quantique qui sert de base à la démonstration de la formule de Kramers-Heisenberg. Par exemple, R. W. Wood, cité par Jayaraman et Ramdas [Jay88], déclara : “Il me semble que cette très belle découverte... est l’une des preuves les plus convaincantes de la théorie quantique que l’on ait à ce jour”.

Entre 1927 et la fin des années 50, la diffusion Raman se développa en tant qu’outil spectroscopique important, mais on n’accorda que peu d’attention à la possibilité d’une diffusion stimulée. Cette situation fut profondément modifiée par l’avènement des lasers et la découverte de l’optique non linéaire dans les années 60. Le développement de sources lumineuses cohérentes de forte puissance impliqua la possibilité d’obtenir des champs diffusés de manière stimulée et contenant un grand nombre de photons par mode, renforçant ainsi l’utilité de l’effet Raman en tant qu’outil spectroscopique. La diffusion stimulée fut observée pour la première fois assez fortuitement dans le nitrobenzène par Woodbury et Ng [Woo62], et fut identifiée comme telle par Eckhardt *et al.* [Eck63].

Parmi les diverses approches théoriques qui furent alors développées pour rendre compte de ce résultat, nous utiliserons dans ce chapitre celle d’Hellwarth [Hel63] afin de discuter plus en détails les effets Raman spontanés et stimulés.

[Ram28] C. W. Raman et K. S. Krishnan, *Nature* **121**, 501 (1928).

[Rq.I-2] L’effet fut observé dans une soixantaine de liquides, ainsi que dans des vapeurs denses d’éther ou d’amylène (diéthyléther et 2-méthyl-2-butène selon la nomenclature officielle).

[Lan28] G. Landsberg et L. I. Mandel’stamm, *Naturwissenschaften* **16**, 557 (1928).

[Jay88] A. Jayaraman et A. K. Ramdas, *Phys. Today* **41**, 56 (1988).

[Woo62] E. J. Woodbury et W. K. Ng, *Proc. IRE* **50**, 2347 (1962).

[Eck63] G. Eckhardt, R. Hellwarth, F. McClung, S. Schwarz, D. Weiner et E. Woodbury, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 455 (1962).

[Hel63] R. Hellwarth, *Phys. Rev.* **130**, 1850 (1963).

2. Diffusion Raman spontanée [Blo67]

Le principe du processus Raman spontané est schématisé sur la Fig. I.2-1. Un photon incident ω est diffusé en un photon ω_s , la différence d'énergie $\hbar(\omega - \omega_s) = \hbar\omega_{ba}$ étant absorbée par le centre diffuseur du matériau (Fig. I.2-1(a)). L'excitation du milieu peut se traduire par un changement d'état électronique, ou plus fréquemment dans le cas des molécules, par une modification de niveau vibrationnel ou rotationnel. La fréquence ω_s est appelée fréquence Stokes. Elle est inférieure à la fréquence incidente d'une quantité correspondant à la fréquence d'excitation du matériau. Si toutefois le système diffuseur est initialement dans un état excité, il peut effectuer une transition vers un niveau d'énergie inférieur lors de la diffusion (Fig. I.2-1(b)). Dans ce cas, la lumière diffusée contient des fréquences anti-Stokes supérieures à la fréquence incidente : $\omega_{as} = \omega + \omega_{ba}$ [Rq.I-3]. Dans les milieux moléculaires, l'intensité de la lumière diffusée à la fréquence anti-Stokes est généralement de plusieurs ordres de grandeur plus faible que celle à la fréquence Stokes, car l'intensité des raies Raman est proportionnelle à la population du niveau initial du processus de diffusion, et qu'à l'équilibre thermique la population du niveau |b) est plus faible que celle du niveau |a) d'une quantité égale au facteur de Boltzmann $\exp(-\hbar\omega_{ba}/k_B T)$.

L'efficacité du processus de diffusion Raman spontanée est caractérisée par la section efficace différentielle de diffusion d'un photon de fréquence ω et de polarisation \bar{e}_0 en un photon de fréquence ω_s et de polarisation \bar{e}_s . Cette section efficace est donnée par la formule de Kramers-Heisenberg, dont une démonstration est proposée en annexe A.I :

$$\frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} = \frac{\omega \omega_s^3 \eta_s^3}{16\pi^2 \epsilon_0^2 c^4 \hbar^2} \left| \sum_c \frac{\langle b | \bar{D} \cdot \bar{e}_s | c \rangle \langle c | \bar{D} \cdot \bar{e}_0 | a \rangle}{\omega_{ca} - \omega} + \frac{\langle b | \bar{D} \cdot \bar{e}_0 | c \rangle \langle c | \bar{D} \cdot \bar{e}_s | a \rangle}{\omega_{cb} + \omega} \right|^2 \quad (I.2-1)$$

où Ω représente l'angle solide de diffusion, η_s l'indice de réfraction du milieu à la fréquence Stokes, \bar{D} l'opérateur dipôle électrique, et |c) un état d'énergie du système diffuseur distinct de |a) et |b). Pour conclure, signalons que le processus de diffusion Raman spontanée est un processus peu efficace : même pour les milieux assez condensés, la section efficace totale de diffusion à la fréquence Stokes par unité de volume est typiquement égale à 10^{-6} cm^{-1} . Ainsi, après propagation à travers 1 cm de milieu diffuseur, seul un millionième de l'énergie incidente aura été diffusée ! Cependant, comme nous allons le voir dans le prochain paragraphe, stimulé par la présence d'une onde laser suffisamment intense, le processus de diffusion Raman peut devenir beaucoup plus efficace.

[Blo67] N. Bloembergen, Am. J. Phys. 35, 989 (1967).

[Rq.I-3] La dénomination Stokes et anti-Stokes a une origine purement historique et n'a aucune signification physique particulière.

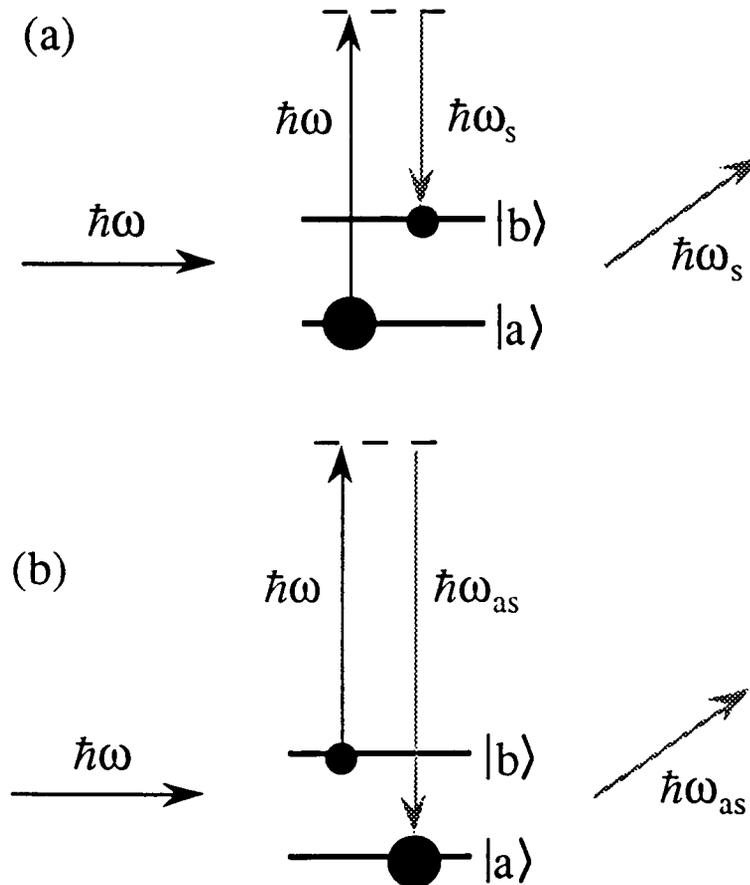


FIG. I.2-1 : Processus de diffusion Raman spontanée d'un photon incident ω . (a) Processus Stokes. (b) Processus anti-Stokes.

3. Diffusion Raman stimulée

Le principe du processus Raman stimulé est schématisé sur la Fig. I.3-1(a). Dans ce cas, le matériau est simultanément éclairé par une onde (sonde) à la fréquence ω_p et une onde (pompe) à la fréquence ω . Un photon ω_p est émis de façon stimulée dans le mode de l'onde sonde, conduisant à une amplification de la sonde aux dépens de l'onde pompe. Ici encore, la différence d'énergie $\hbar(\omega - \omega_p) = \hbar\omega_{ba}$ est absorbée par le matériau diffuseur. L'efficacité de ce processus peut être assez grande et la puissance transférée à la fréquence Stokes atteint couramment plus de 10% de la puissance de la lumière incidente.

La relation entre les processus d'émission stimulée et spontanée s'exprime par le fait que la probabilité qu'à un oscillateur de fréquence ω_p d'effectuer une transition d'un état à n_p quanta

d'excitation vers un état à n_p+1 quanta est proportionnelle à n_p+1 ($n_p = 0$ pour le processus spontané). Comme nous l'avons vu, le nombre de quanta $(dn_p)_{sp}$ diffusés spontanément par élément de longueur dz et par unité d'angle solide $d\Omega$ s'exprime au moyen de la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée :

$$(dn_p)_{sp} = N \pi_a n_0 (d\sigma_{sp}^R/d\Omega) d\Omega dz \quad (I.3-1)$$

où N est le nombre de centres diffuseurs (généralement des molécules) par unité de volume, π_a la probabilité qu'un tel centre soit dans le niveau d'énergie le plus bas $|a\rangle$, et n_0 le nombre de photons lasers pompes incidents.

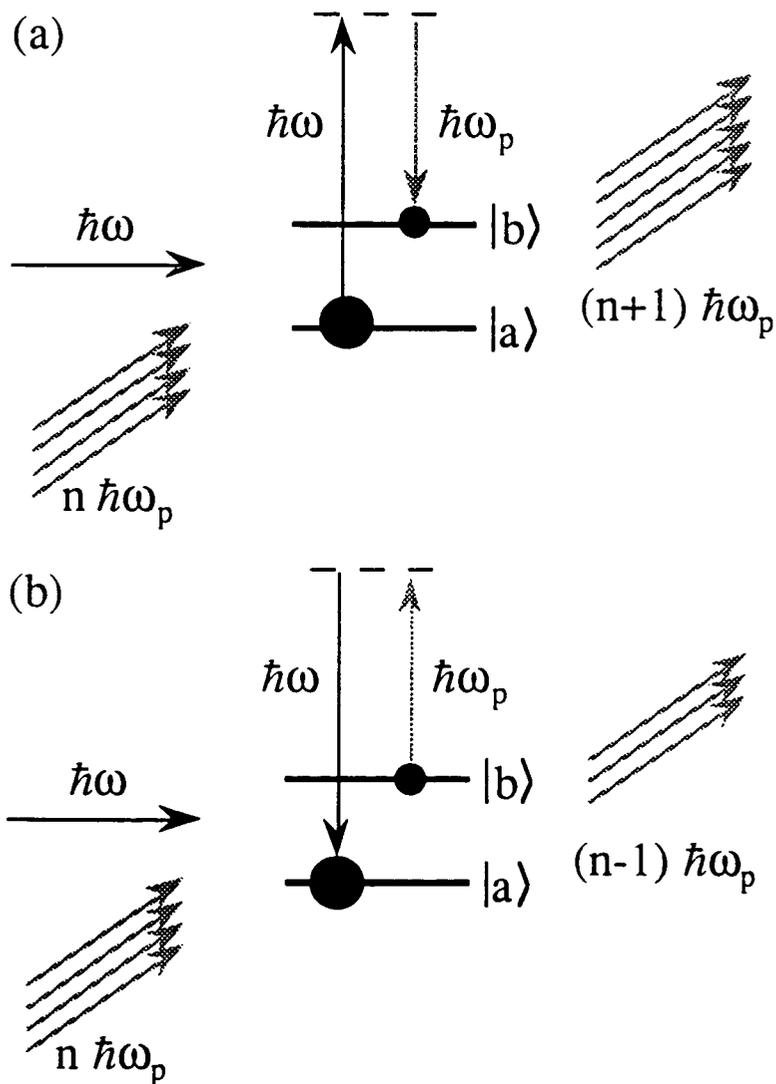


FIG. I.3-1 : Processus de diffusion Raman stimulée de l'onde sonde, résultant d'une compétition entre amplification (a) et absorption (b).

Un second facteur différencie les processus spontanés et les processus stimulés. Les premiers sont en effet proportionnels à la population du niveau initial, alors que les seconds dépendent de la *différence* entre les populations des niveaux initial et final. En effet, au processus d'amplification stimulé partant du niveau |a) et aboutissant au niveau |b) (Fig. I.3-1(a)) s'oppose, lorsque le niveau |b) est peuplé, le processus d'absorption stimulée partant de |b) et aboutissant à |a) (Fig. I.3-1(b)). Une autre différence entre processus Raman spontanés et stimulés tient au continuum d'état final à considérer. Dans le cas du processus spontané, la direction et la polarisation du photon émis sont des quantités partiellement indéterminées et le continuum d'états est relatif au rayonnement, alors que pour le processus stimulé, le photon émis a des caractéristiques parfaitement définies et le continuum d'états est relatif au système matériel. La variation du nombre de photons Stokes par émission et absorption Raman stimulées peut s'exprimer selon :

$$\frac{dn_p}{dz} = N(\pi_a - \pi_b) \frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} n_p n_0 \left(\frac{c^3}{V v_p^2 \eta_p^3} \Lambda(v_p) \right) \quad (I.3-2)$$

où V est le volume de quantification du rayonnement, et $v_p = \omega_p / 2\pi$. Le dernier facteur exprime le fait que la densité d'états finals est différente pour les processus spontanés et stimulés. Dans le cas des processus spontanés, la quantité qui intervient est le nombre de modes du *vide* par unité d'angle solide, et par unité de fréquence $V v_p^2 \eta_p^3 / c^3$. Pour l'absorption et l'émission stimulée de photons Stokes dans une onde électromagnétique, c'est la densité d'états du *matériau* qui compte. Cette quantité peut être décrite en termes d'une fonction de forme normalisée $\Lambda(v_p)$, qui peut souvent être représentée par une Lorentzienne présentant une résonance pour $\omega_p = \omega - \omega_{ba}$, de demi-largeur à mi-hauteur Γ_{ab} :

$$\Lambda(v_p) = \frac{2\Gamma_{ab}}{(\omega - \omega_p - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ab}^2} \quad (I.3-3)$$

Comme à résonance $\Lambda = 2/\Gamma_{ab}$, l'expression (I.3-2) montre que le phénomène de diffusion stimulée dépasse celui de diffusion spontanée à condition que le nombre de photons n_p soit bien supérieur au nombre de modes du vide électromagnétique contenu dans l'intervalle de fréquence correspondant à la largeur Γ_{ab} . C'est cette propriété qui a rendu l'observation de l'effet Raman stimulé impossible avant l'avènement de sources lasers de forte puissance, et ce n'est pas un hasard si la première observation a été effectuée dans le laboratoire où le laser à Rubis fut mis au point !

En intégrant l'équation différentielle (I.3-2), on trouve que le nombre de photons n_p , ou de manière équivalente l'intensité de l'onde sonde I_p qui lui est proportionnelle, croît de façon exponentielle au cours de sa propagation à travers le milieu Raman :

$$I_p(L) = I_p(0) e^{g_p L} \quad (\text{I.3-4})$$

où L est la longueur de la zone d'interaction. Le coefficient de gain g_p se déduit sans difficulté de (I.3-2) :

$$g_p = N(\pi_a - \pi_b) \left(\frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} \right) \left(\frac{c^3 \eta^2 \epsilon_0 \Lambda(v_p)}{2v_p^2 \eta_p^3 \hbar \omega} \right) I_0 \quad (\text{I.3-5})$$

I_0 étant l'intensité de l'onde pompe (le nombre de photons pompes est bien entendu proportionnel à l'intensité de l'onde laser pompe), et η est l'indice du milieu à la fréquence ω .

Terminons par quelques ordres de grandeur dans le cas du nitrobenzène (liquide) qui donna lieu à la première observation de l'effet Raman stimulé : $\omega_{ba}/2\pi c \approx 1345 \text{ cm}^{-1}$, $\sigma_{sp}^R \approx 6.10^{-30} \text{ cm}^2$ (section efficace *totale* de diffusion), $\Gamma_{ba}/2\pi c \approx 4 \text{ cm}^{-1}$, $\pi_a \approx 1$, $g_p \approx 0.3 \text{ cm}^{-1}$ pour une intensité laser de 10^8 W.cm^{-2} .

4. Diffusion Raman stimulée dans les milieux atomiques dilués

4.1. Généralités

Toutes les situations qui seront envisagées dans la suite concernent des milieux gazeux formés d'un ensemble d'atomes de faible densité, et donc sans interaction mutuelle. Les faisceaux lasers pompes (resp. sonde) de fréquence ω (resp. $\omega_p = \omega + \delta$) sont accordés au voisinage d'une transition atomique fermée (fréquence ω_A) entre un niveau fondamental $|g\rangle$ de moment cinétique J_g et un niveau excité $|e\rangle$ de moment cinétique J_e [Rq.I-4]. Les intensité et désaccord ($\Delta = \omega - \omega_A$) des lasers pompes sont choisis de manière à ne pas saturer la transition optique (paramètre de saturation de la transition $s_0 \ll 1$). Le niveau fondamental (resp. excité) comporte un ensemble de

[Rq.I-4] Nous ne considérons pas les processus Raman stimulés entre deux niveaux hyperfins d'un atome. De tels mécanismes, conduisant à une oscillation dans une cavité, ont été observés par exemple par P. Kumar et J. H. Shapiro, Opt. Lett. 10, 226 (1985).

sous-niveaux Zeeman $|g, \mu\rangle$ (resp. $|e, m\rangle$) dégénérés et également peuplés en l'absence de toute perturbation extérieure.

Plusieurs conditions sont à remplir pour qu'un effet Raman stimulé soit observable dans un tel milieu. En effet, ce processus impliquant l'existence de niveaux d'énergie non dégénérés différemment peuplés, il est nécessaire d'appliquer une perturbation extérieure conduisant à une levée de dégénérescence entre les sous-niveaux Zeeman du niveau fondamental (seuls peuplés de façon significative à cause de la faible saturation de la transition atomique), ainsi qu'à une modification des populations de ces sous-niveaux. L'emploi d'un champ magnétique statique peut être adopté comme moyen de lever la dégénérescence (par effet Zeeman), mais à température ordinaire il ne saurait suffire seul à modifier les population des sous-niveaux. Le moyen le plus simple s'avère être en fait l'utilisation de lasers qui, pour peu que l'on choisisse convenablement leur polarisation, intensité et désaccord, conduisent d'une part à une levée de dégénérescence par déplacement lumineux des sous-niveaux Zeeman [Coh62] (effet Stark dynamique), et d'autre part à une modification des populations de ces sous-niveaux par pompage optique [Coh66]. Ces lasers servant également de faisceaux pompes pour le processus Raman, les contraintes expérimentales s'en trouvent considérablement minimisées.

Ce choix expérimental, retenu pour toutes les situations qui nous occuperont par la suite, restreint l'étendue des valeurs possible des paramètres intervenant dans la formule générale (I.3-5) :

- L'indice du milieu peu dense est très proche de l'unité à toute fréquence.
- L'opérateur moment dipolaire électrique ne couple le niveau fondamental qu'au seul niveau excité. L'état intermédiaire $|c\rangle$ apparaissant dans la somme (I.2-1) est donc un sous-niveau Zeeman $|e, m\rangle$ du niveau excité.
- Les déplacements lumineux $\approx \hbar\Delta s_0$ sont très petits devant les fréquences optiques, d'où $\omega_p \approx \omega$, ainsi que devant le désaccord à résonance Δ (faible saturation de la transition atomique), donc les dénominateurs apparaissant dans la somme (I.2-1) valent $\omega_{ca} - \omega \approx -\Delta$ et $\omega_{cb} + \omega \approx 2\omega \gg |\Delta|$.

En tenant compte de ces caractéristiques, le gain linéique (I.3-5) du faisceau sonde de fréquence ν_p lié à la transition Raman stimulée entre les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ prend la forme simplifiée suivante :

[Coh62] C. Cohen-Tannoudji, *Ann. Phys.* 7, 423 (1962).

[Coh66] C. Cohen-Tannoudji et A. Kastler, in *Progress in Optics*, Vol. 5, édité sous la direction scientifique de E. Wolf, North-Holland, Amsterdam (1966).

$$g_p(\nu_p) = (\pi_a - \pi_b) \frac{NI_0 \Lambda(\nu_p)}{\Delta^2} \frac{\omega D^4}{8 \epsilon_0 c \hbar^3} |\langle b | \wp | a \rangle|^2 \quad (\text{I.4.1-1})$$

avec :

$$\wp = (\bar{d}^- \cdot \bar{e}_p^*) (\bar{d}^+ \cdot \bar{e}_0) \quad (\text{I.4.1-2})$$

et $\bar{d}^+ = (\bar{d}^-)^\dagger = P_e (\bar{D}/D) P_g$ où P_g (resp. P_e) représente le projecteur sur l'espace formé par les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental (resp. excité), et D l'élément de matrice réduit de l'opérateur dipôle électrique \bar{D} . Pour établir cette expression, on a fait notamment usage de l'approximation de champ tournant, ainsi que de la relation de fermeture pour les sous-niveaux Zeeman de l'état excité. Notons que (I.4.1-1) est une formule très générale qui, bien qu'écrite ici dans le cadre de l'approximation semi-classique, se transpose immédiatement dans le cas où les degrés de liberté externes de l'atome sont quantifiés, en incluant dans $|a\rangle$ et $|b\rangle$ la partie externe de la fonction d'onde atomique, et dans \bar{e}_0 et \bar{e}_p la dépendance spatiale des champs lasers. Remarquons enfin que les quantités I_0 et \bar{e}_0 figurant dans (I.4.1-1) ne supposent pas nécessairement la présence d'un seul laser pompe, mais qu'elles décrivent plus généralement la situation où plusieurs lasers pompes résultent au point où se trouve l'atome en un champ d'intensité I_0 et de polarisation \bar{e}_0 .

L'utilisation de la formule (I.4.1-1) permet d'obtenir d'emblée de très nombreuses informations quant à l'allure du spectre Raman de transmission d'un faisceau sonde à travers un milieu atomique. En effet, dans le cas d'un milieu peu dense et de faible longueur L , la quantité g_p L est suffisamment petite pour que le facteur d'amplification de la sonde, et par suite son spectre de transmission, soit directement proportionnel à g_p . Cependant, ce spectre de transmission résulte dans le cas général de la somme des contributions de différentes paires de sous-niveaux Zeeman du fondamental, et peut présenter une structure relativement complexe. D'après (I.4.1-1), chaque paire de niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ inégalement peuplés contribue généralement au spectre sous la forme de deux résonances de forme lorentzienne, de demi-largeur à mi-hauteur Γ_{ab} et centrées autour de $\omega_p = \omega \pm \omega_{ba}$. En supposant par exemple $\pi_a > \pi_b$, la résonance centrée autour de $\omega_p = \omega - \omega_{ba}$ correspondra à une *amplification* de la sonde et aura une amplitude proportionnelle au module carré de \wp_{ba} , tandis que la résonance centrée autour de $\omega_p = \omega + \omega_{ba}$ correspondra à une *absorption* de la sonde et aura une amplitude proportionnelle au module carré de \wp_{ab} . Il est important de noter que ω_{ba} n'est pas nécessairement une quantité positive (le pompage optique pouvant conduire à des situations très éloignées de l'équilibre thermodynamique), de telle sorte que la position relative des résonances en amplification et en absorption n'est pas évidente *a priori*. D'autre part, l'opérateur \wp n'étant généralement pas auto-adjoint, ces deux résonances auront dans la plupart des cas des *amplitudes différentes*. Enfin, remarquons que la dépendance de l'amplitude des

résonances en fonction des paramètres des lasers pompes suit une loi en $I_0/\Delta^2 \Gamma_{ab}$ (en supposant que les populations des niveaux sont indépendantes de I_0 et de Δ , ce qui est une bonne approximation pour les situations envisagées dans la suite). Ainsi, dans le cas particulier où la largeur Γ_{ab} est due à un phénomène extérieur aux ondes lasers pompes (comme c'est très fréquemment le cas), cette amplitude varie en I_0/Δ^2 .

4.2. Résonances Raman stimulées dans une vapeur atomique

A titre d'illustration des considérations générales développées au §I.4.1 précédent, nous proposons ici une géométrie d'expérience qui pourrait donner lieu à l'observation de résonances Raman stimulées dans une vapeur atomique [Rq.I-5]. Considérons par exemple une situation semblable à celle décrite au §I.4.1, pour le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$. L'onde pompe est constituée d'un faisceau laser d'intensité I_0 , polarisé linéairement le long de l'axe Oz pris comme axe de quantification, et se propageant selon la direction +y (Fig. I.4.2-1(a)). Ce faisceau est suffisamment désaccordé pour ne pas saturer la transition atomique (paramètre de saturation $s_0 \ll 1$). De plus, le désaccord à résonance est grand en valeur absolue devant la largeur Doppler du milieu, de manière à ce que l'interaction atome-laser soit indépendante de la classe de vitesse atomique (ce qui en d'autres termes revient à considérer les atomes immobiles). On suppose enfin que la seule cause d'élargissement des sous-niveaux Zeeman du fondamental est le phénomène de pompage optique par le faisceau pompe. L'onde laser sonde est choisie polarisée linéairement le long de la direction Ox, et se propage dans la même direction que l'onde pompe selon +y. Son intensité est choisie suffisamment faible pour ne pas modifier les déplacements lumineux des sous-niveaux Zeeman, ni affecter le pompage optique (Fig. I.4.2-1(a)).

En utilisant l'équation du pompage optique (R.3.1-7) en l'absence de sonde, le calcul des populations stationnaires π_μ , des déplacements lumineux E_μ , ainsi que des largeurs Γ_μ des sous-niveaux Zeeman $|g, \mu\rangle$ du fondamental conduit sans difficulté aux expressions suivantes :

$$\begin{cases} \pi_{-1} = \pi_1 = \frac{4}{17} \\ \pi_0 = \frac{9}{17} \end{cases} \quad (\text{I.4.2-1})$$

$$\begin{cases} E_{-1} = E_1 = \frac{1}{4} \hbar \Delta s_0 \\ E_0 = \frac{1}{3} \hbar \Delta s_0 \end{cases} \quad (\text{I.4.2-2})$$

[Rq.I-5] On effectue ici la distinction entre *vapeurs atomiques*, de température typique 100° C, et *mélanges optiques*, de température typique quelques μK .

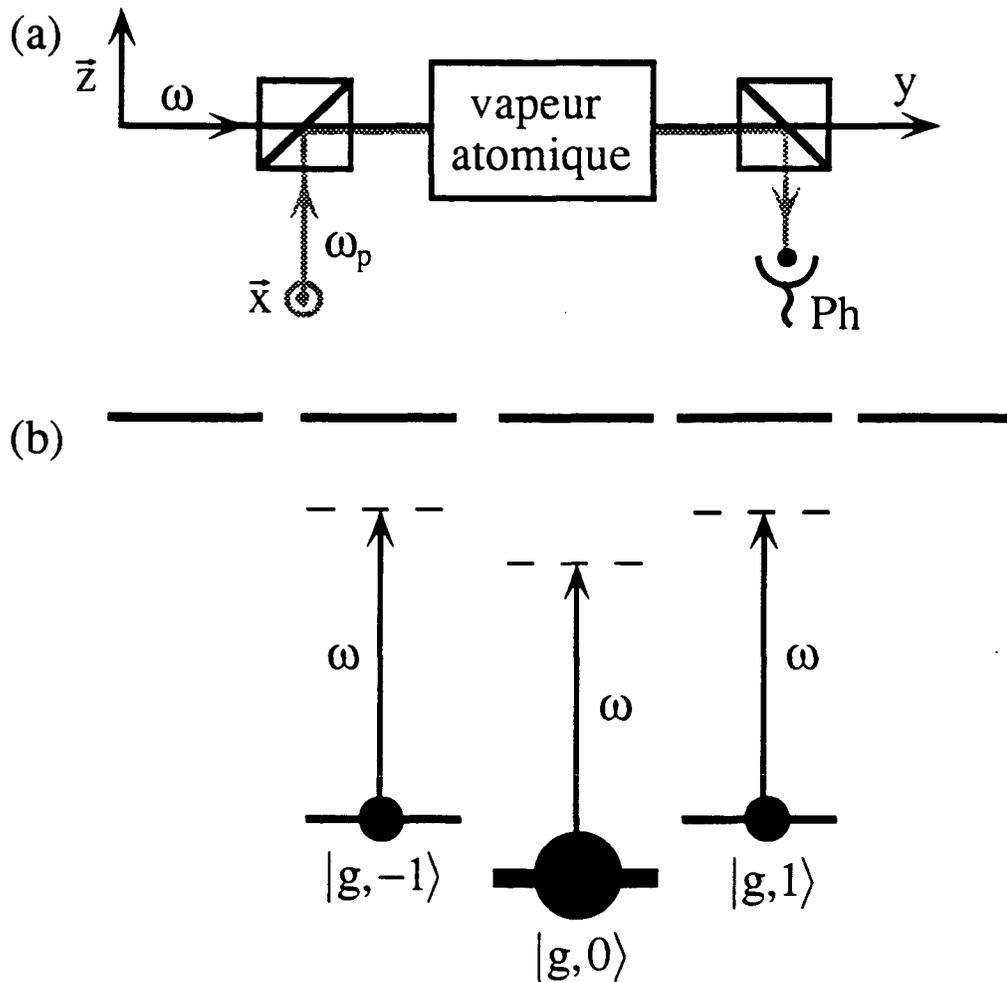


FIG. I.4.2-1 : (a) Principe de l'expérience destinée à l'observation de l'effet Raman stimulé dans une vapeur atomique. Les faisceaux pompe (ω) et sonde (ω_p), ayant des polarisations linéaires orthogonales, se copropagent dans une cellule contenant une vapeur atomique. A la sortie de la cellule, l'intensité du faisceau sonde est mesurée en fonction de ω_p au moyen d'une photodiode Ph. (b) L'interaction du faisceau pompe avec les atomes induit des différences de déplacements lumineux et de populations (schématisées par des disques noirs) dans l'état fondamental. Les déplacements lumineux du niveau excité ne sont pas représentés, et l'on s'est placé dans le cas d'un désaccord à résonance "rouge" ($\Delta < 0$).

$$\begin{cases} \Gamma_{-1} = \Gamma_1 = \frac{1}{4}\Gamma s_0 \\ \Gamma_0 = \frac{1}{3}\Gamma s_0 \end{cases} \quad (\text{I.4.2-3})$$

où l'on remarque l'existence de niveaux ayant des populations (I.4.2-1) et des déplacements lumineux (I.4.2-2) différents (Fig. I.4.2-1(b)). Les paramètres Γ et s_0 introduits dans les équations (I.4.2-2) et (I.4.2-3) sont respectivement la largeur naturelle du niveau excité, et le paramètre de saturation de la transition optique, égal à :

$$s_0 = \frac{\Omega^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (\text{I.4.2-4})$$

où Ω est la fréquence de Rabi caractérisant le couplage entre le dipôle atomique et le champ pompe.

Le choix de polarisation des lasers retenu conduit à la représentation matricielle de l'opérateur \wp (Eq. (I.4.1-2)) dans la base $\{|g,-1\rangle, |g,0\rangle, |g,1\rangle\}$:

$$\wp = \frac{1}{6\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & -2 & 0 \\ 3 & 0 & -3 \\ 0 & 2 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.4.2-5})$$

qui ne couple $|g,0\rangle$ qu'aux sous-niveaux $|g,-1\rangle$ et $|g,1\rangle$, et réciproquement. Nous choisirons pour $|a\rangle$ le niveau le plus peuplé $|g,0\rangle$ (Eq. (I.4.2-1)), et pour $|b\rangle$ l'un des deux états $|g,-1\rangle$ ou $|g,1\rangle$ (le problème restant invariant dans l'échange des états $|g,-1\rangle$ et $|g,1\rangle$, il est d'ailleurs possible de calculer le spectre de transmission de la sonde en ne choisissant pour $|b\rangle$ qu'un seul état, $|g,1\rangle$ par exemple). Nous remarquons de plus que l'opérateur \wp n'est pas auto-adjoint, et l'on s'attend donc à trouver deux résonances ayant des amplitudes différentes. Finalement, on déduit de (I.4.2-3) et (I.4.2-4) :

$$\omega_{ba} = \omega_R = -\frac{1}{12} \Delta s_0 \quad (\text{I.4.2-6})$$

$$\Gamma_{ba} = \gamma_0 = \frac{7}{24} \Gamma s_0 \quad (\text{I.4.2-7})$$

On déduit alors immédiatement de (I.4.1-1) :

$$g_p(\delta) \propto \frac{N I_0}{\Delta^2} \left(\frac{4\gamma_0}{(\delta + \omega_R)^2 + \gamma_0^2} - \frac{9\gamma_0}{(\delta - \omega_R)^2 + \gamma_0^2} \right) \quad (\text{I.4.2-8})$$

que l'on a exprimé en termes de la différence de fréquence entre faisceaux pompe et sonde $\delta = \omega_p - \omega$. On a représenté sur la Fig. I.4.2-2 l'allure du spectre de transmission de la sonde (proportionnel à g_p) en fonction de δ pour différentes valeurs du désaccord à résonance Δ . Comme attendu, ces spectres présentent deux résonances de demi-largeur (homogène) de l'ordre de γ_0 et ayant des amplitudes différentes. La première, centrée en $\delta = -\omega_R$ ($\omega_p < \omega$ dans le cas $\Delta < 0$, $\omega_p > \omega$ dans le cas $\Delta > 0$) correspond à une amplification stimulée par le processus schématisé sur la Fig. I.4.2-3(a), tandis que la seconde, centrée en $\delta = \omega_R$ ($\omega_p > \omega$ dans le cas $\Delta < 0$, $\omega_p < \omega$ dans le cas $\Delta > 0$) et plus intense, correspond à une absorption stimulée par le processus schématisé sur la Fig. I.4.2-3(b).

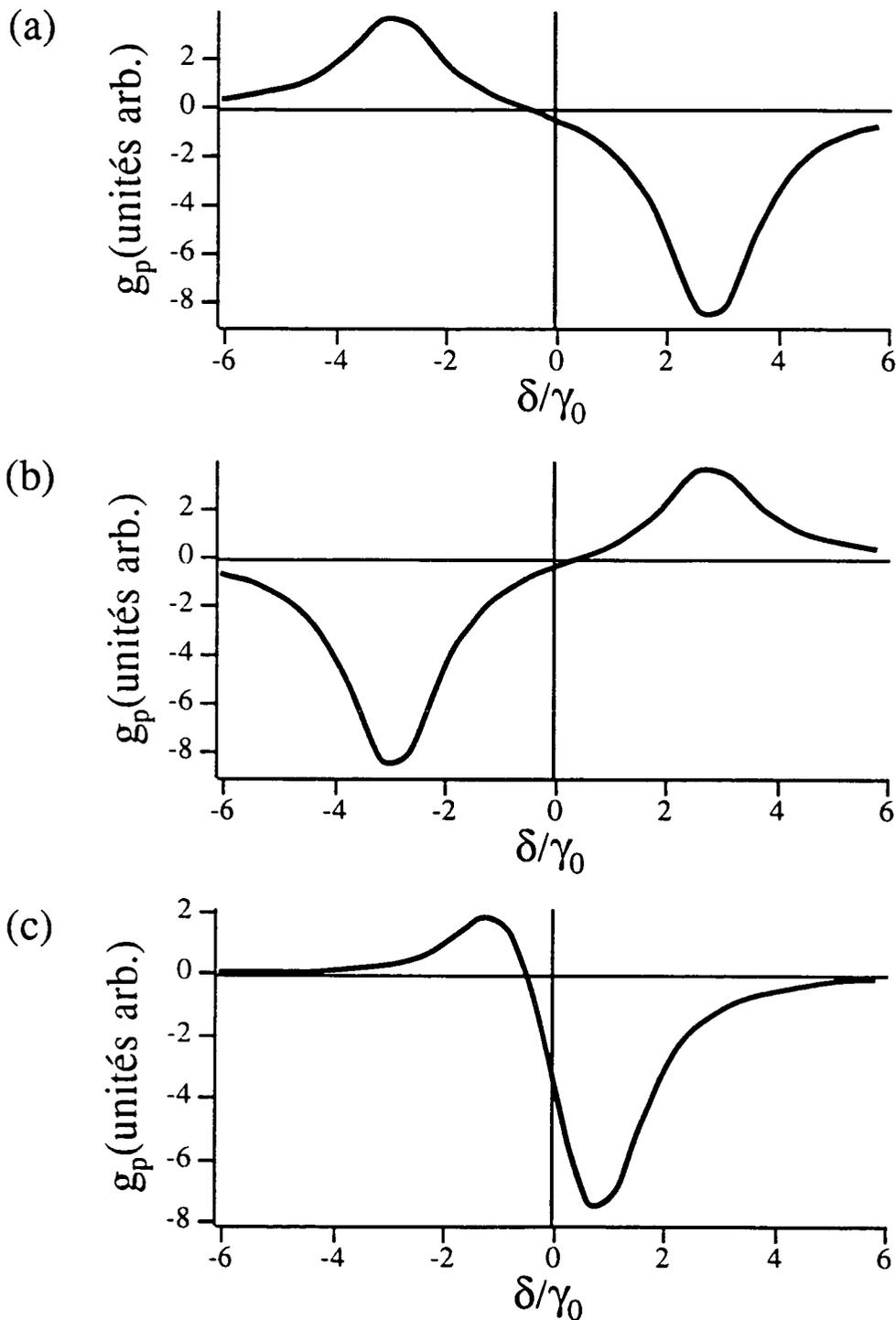


FIG. I.4.2-2 : Dépendance du spectre de transmission de la sonde (proportionnel au gain linéique g_p) en fonction du paramètre sans dimension δ/γ_0 , pour plusieurs valeurs du désaccord à résonance Δ . (a) $\Delta = -10 \Gamma$: à grand désaccord, le spectre est constitué de deux raies lorentziennes d'amplitudes différentes. (b) $\Delta = +10 \Gamma$: lorsque le désaccord change de signe, les positions des résonances en absorption et en amplification sont échangées, tandis que leurs amplitudes restent inchangées. (c) $\Delta = -3 \Gamma$: à petit désaccord, les deux résonances sont séparées d'une distance inférieure à leur largeur, et conduisent à une structure d'allure dispersive dissymétrique ne s'annulant pas en $\delta = 0$.

La Fig. I.4.2-3 fournit en outre une interprétation à la différence d'amplitude entre les deux résonances : on y constate en effet que les deux processus impliqués dans l'absorption et l'amplification stimulées de la sonde font intervenir des coefficients de Clebsch-Gordan différents. C'est cette propriété qui est responsable de la dissymétrie entre les deux résonances Raman.

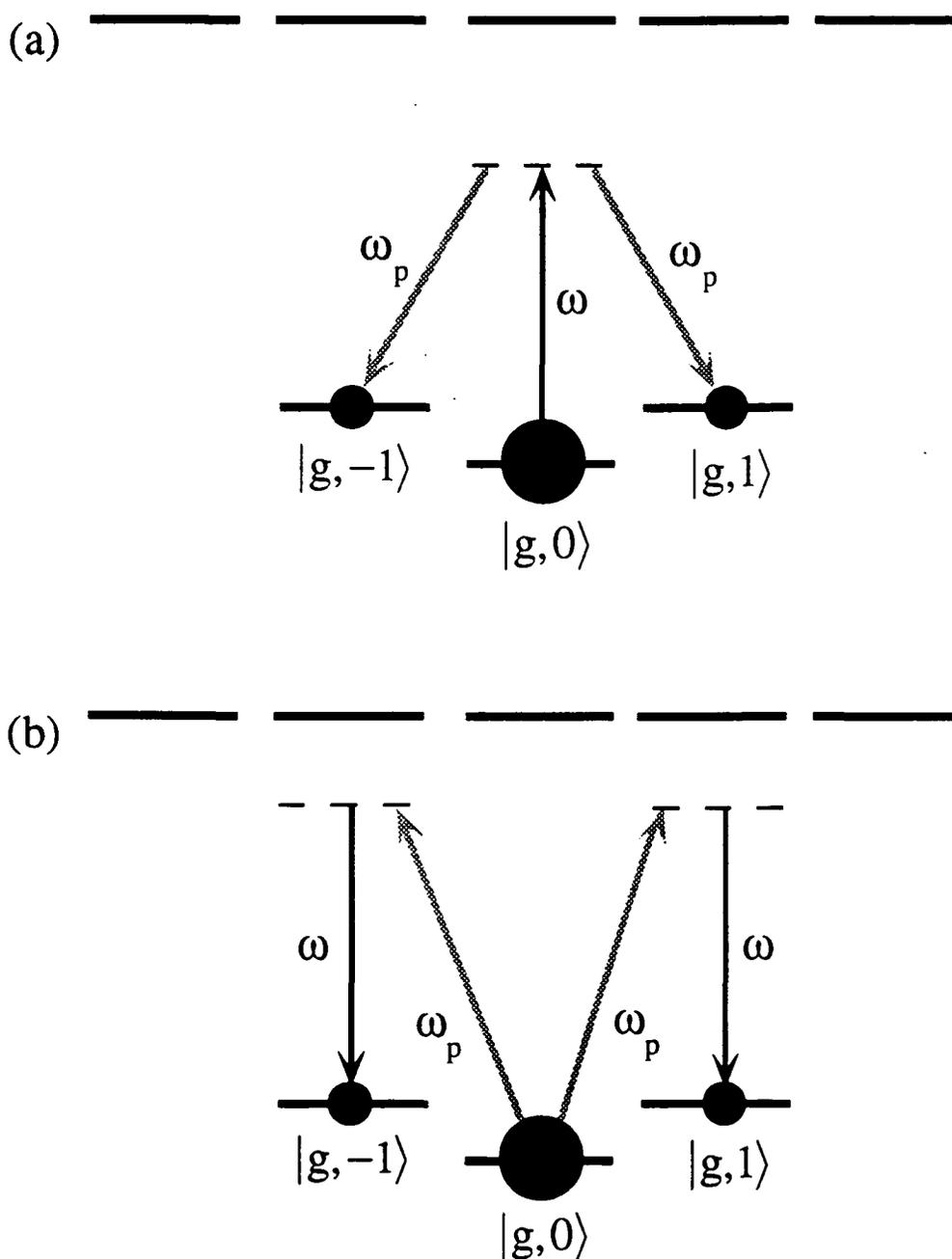


FIG. I.4.2-3 : Processus Raman stimulés à l'origine de l'amplification (a) et de l'absorption (b) résonnantes de la sonde à travers la vapeur atomique. Noter que les deux processus ne font pas intervenir les mêmes coefficients de Clebsch-Gordan. Cette propriété se traduit par une dissymétrie entre les deux résonances. Les déplacements lumineux du niveau excité ne sont pas représentés et l'on s'est placé dans le cas d'un désaccord à résonance "rouge" ($\Delta < 0$).

Les lois de variation en fonction des paramètres lasers de la largeur, de la distance pic-à-pic, et de l'amplitude des résonances se déduit également aisément de (I.4.2-8). Il est particulièrement instructif de comparer ces lois de variation à celles obtenues pour une situation où l'élargissement de la transition, la levée de dégénérescence entre niveaux, ainsi que les différences de populations ne sont pas dus au faisceau pompe. Les résultats correspondants sont consignés dans le tableau I.4.2-1 suivant :

	(a)	(b)
Largeur de raie	I_0/Δ^2	1
Distance pic-à-pic	I_0/Δ	1
Amplitude	1	I_0/Δ^2

Tableau I.4.2-1 : Comparaison des lois de variation de différentes caractéristiques des résonances Raman stimulées en fonction des paramètres intensité I_0 et désaccord à résonance Δ du faisceau pompe, selon que le processus d'élargissement de la transition est entièrement dû au pompage optique (a) ou en est totalement indépendant (b).

On constate ainsi que si le processus d'élargissement de la transition est entièrement lié au pompage optique, l'allure du spectre n'est que peu sensible à une variation d'intensité du laser pompe (qui se manifeste par une simple dilatation selon l'axe des δ), mais dépend crucialement de la valeur du désaccord à résonance. D'une part, lorsque l'on passe d'un côté à l'autre de la résonance (changement de signe du désaccord), la différence d'énergie entre le niveau le plus peuplé |a) et le niveau le moins peuplé |b) change de signe, de telle sorte que la position des raies en amplification et en absorption est échangée, tandis que leur amplitude reste constante (Fig. I.4.2-2(b)) (en particulier, la raie en absorption conserve toujours une amplitude supérieure à celle en amplification). D'autre part, lorsque le désaccord diminue en valeur absolue, la distance pic-à-pic des raies devient comparable, sinon inférieure à leur largeur, si bien que l'on passe d'un spectre présentant deux résonances lorentziennes bien séparées (grand désaccord, Fig. I.4.2-2(a)) à un spectre comportant une structure de forme dispersive, bien que dissymétrique et ne s'annulant pas pour $\delta = 0$ (petit désaccord, Fig. I.4.2-2(c)). Il semble toutefois difficile de parvenir à observer un tel spectre dans une vapeur atomique où le désaccord à résonance doit être choisi supérieur en valeur absolue à la largeur Doppler du milieu. L'emploi de mélasses optiques où la largeur Doppler est suffisamment réduite pour ne plus constituer une limitation sur le choix du désaccord à résonance, conduit à de tels spectres [Rq.I-6] (bien que la géométrie de l'expérience

[Rq.I-6] On trouvera l'exemple d'un tel spectre dans la Réf. [Lou92], ainsi qu'au chapitre IV (§IV.3).

soit sensiblement différente afin de ne pas provoquer d'échauffement excessif des atomes, et donc la destruction de la mélasse).

Notons enfin que l'expérience présentée ici dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ se généralise immédiatement au cas de toute transition partant d'un niveau de moment cinétique supérieur ou égal à 1 [Rq.I-7]. Dans le cas d'un moment cinétique élevé, plusieurs couples de sous-niveaux Zeeman de séparations d'énergie différentes contribuent simultanément au spectre de transmission de la sonde. Ainsi, bien que chacun des couples conduise à un spectre identique à celui décrit précédemment, présentant en particulier les mêmes lois de variation en fonction des paramètres du laser pompe, la superposition des différentes contributions des divers couples conduit à un spectre de forme plus complexe (particulièrement à grand désaccord où des sous-structures sont attendues) et ne satisfaisant plus aux lois de variation précédemment mentionnées.

4.3. Transitions Raman stimulées entre états appartenant à un continuum d'énergie : résonance Raman induite par le recul

Comme nous l'avons déjà remarqué à plusieurs reprises, l'observation de l'effet Raman stimulé nécessite l'existence de niveaux d'énergie non dégénérés possédant des populations différentes. Nous avons jusqu'à présent envisagé le cas où ces niveaux appartiennent à un spectre d'énergie *discret*, mais une telle propriété n'est en fait nullement nécessaire à l'existence d'un effet Raman. Nous nous proposons de montrer ici qu'il est ainsi envisageable d'observer un tel effet dans le cas où les niveaux d'énergie appartiennent à un spectre continu lié à la distribution d'impulsion des atomes, et que moyennant quelques hypothèses sur la dynamique de relaxation du milieu, il est possible de déduire de la largeur de la résonance Raman des informations sur la température de la vapeur atomique étudiée.

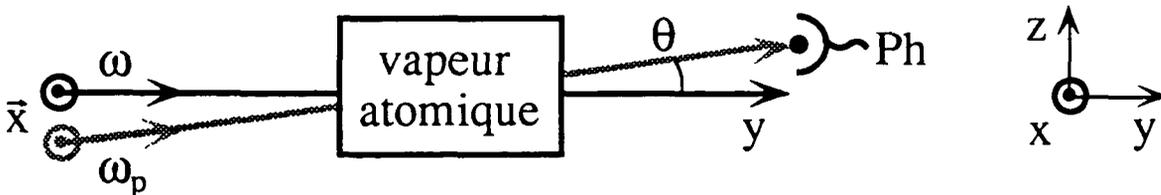


FIG. I.4.3-1 : Schéma expérimental pour l'observation de l'effet Raman stimulé entre états appartenant au continuum d'énergie associé à la distribution d'impulsion atomique.

Considérons une situation expérimentale semblable à celle envisagée au §I.4.2, mais pour le cas d'un atome à deux niveaux ($|g\rangle$ et $|e\rangle$) non dégénérés, les deux ondes pompe et sonde étant polarisées linéairement selon \vec{x} et faisant un petit angle θ entre elles (Fig. I.4.3-1). Le désaccord à

[Rq.I-7] Ce qui est le cas de la Réf. [Lou92] pour laquelle la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ du césium est utilisée.

résonance est à nouveau choisi grand devant la largeur Doppler du milieu, et tel que la transition atomique ne soit pas saturée. La vapeur atomique est maintenue au contact d'un réservoir de température T , qui détermine sa distribution d'impulsion $\pi(\vec{p})$, supposée suivre la loi de Maxwell-Boltzmann :

$$\pi(\vec{p}) = \pi(\vec{0}) \exp(-\vec{p}^2/2Mk_B T) \quad (\text{I.4.3-1})$$

où M est la masse atomique et k_B la constante de Boltzmann.

La quantification des degrés de liberté externes de l'atome (position et impulsion du centre de masse atomique) conduit alors à associer au niveau fondamental $|g\rangle$ un spectre continu d'énergies propres $E(\vec{p}) = \vec{p}^2/2M$ associées aux vecteurs propres $|g\rangle \otimes |\vec{p}\rangle$. L'opérateur \wp (Eq. (I.4.1-2)) décrivant le couplage Raman entre les états $|g\rangle \otimes |\vec{p}\rangle$, s'écrit :

$$\wp = (\vec{d}^- \cdot \vec{x})(\vec{d}^+ \cdot \vec{x}) e^{i(\vec{k} - \vec{k}_p) \cdot \vec{R}} \approx (\vec{d}^- \cdot \vec{x})(\vec{d}^+ \cdot \vec{x}) e^{-ik\theta Z} \quad (\text{I.4.3-2})$$

où \vec{R} désigne l'opérateur position du centre de masse atomique, et $Z = \vec{R} \cdot \vec{z}$ (on note \vec{x} et \vec{z} les vecteurs unitaires selon les directions x et z). L'opérateur \wp ne faisant intervenir que la composante Z de l'opérateur position, seuls les degrés de liberté externes selon la direction \vec{z} seront quantifiés ici. On trouve ainsi que seuls les couples de niveaux de type $|a\rangle = |g\rangle \otimes |p_z\rangle$ et $|b\rangle = |g\rangle \otimes |p_z - \theta\hbar k\rangle$ conduisent à un effet Raman stimulé [Rq.I-8] et contribuent au gain linéique g_p (Eq. (I.4.1-1)) proportionnellement à la différence des "populations" relatives aux impulsions p_z et $p_z - \theta\hbar k$:

$$g_p(\delta) \propto \frac{NI_0}{\Delta^2} \int dp_z \frac{\gamma [\pi(p_z) - \pi(p_z - \theta\hbar k)]}{(\delta - \theta kp_z/M)^2 + \gamma^2} \quad (\text{I.4.3-3})$$

où γ désigne le taux caractéristique de relaxation des populations des états $|g\rangle \otimes |\vec{p}\rangle$. Il est important de noter que cet effet Raman stimulé s'accompagne d'un changement d'état *externe* de l'atome, et non d'état *interne* comme c'était le cas pour la situation étudiée au §I.4.2. En tenant compte du fait que la distribution d'impulsion $\pi(p_z)$ varie peu à l'échelle de $\theta\hbar k$, (I.4.3-3) se transforme selon :

$$g_p(\delta) \propto \theta \frac{NI_0}{\Delta^2} \int dp_z \frac{\gamma \partial_{p_z} \pi(p_z)}{(\delta - \theta kp_z/M)^2 + \gamma^2} \quad (\text{I.4.3-4})$$

[Rq.I-8] En particulier, à la différence du cas envisagé au §I.4.2, les couples symétriques ne sont *pas* couplés par \wp . On retrouve ainsi la situation du §I.4.2, mais dans le cas limite où l'une des deux résonances associées aux différents couples de niveaux a une amplitude nulle.

qui apparaît comme le produit de convolution en $p_z = M\delta/\theta k$ de la fonction $\partial_{p_z} \pi(p_z)$ et d'une distribution lorentzienne de demi-largeur $\gamma M/\theta k$, que l'on peut approximer par la distribution de Dirac δ :

$$\frac{\gamma(M/\theta k)^2}{p_z^2 + (\gamma M/\theta k)^2} \approx \frac{\pi M}{\theta k} \delta(p_z) \quad (\text{I.4.3-5})$$

dans le cas d'une relaxation lente des variables externes :

$$\gamma \ll \theta k \bar{v} \quad (\text{I.4.3-6})$$

où \bar{v} désigne la vitesse quadratique moyenne des atomes déduite de (I.4.3-1) (notons que cette condition ne peut pas être satisfaite pour des valeurs trop faibles de l'angle θ entre les faisceaux pompe et sonde). Dans cette limite, l'expression (I.4.3-4) se transforme aisément en :

$$g_p(\delta) \propto \frac{N I_0}{\Delta^2} \partial_{p_z} \pi(M\delta/\theta k) \propto -\frac{N I_0}{k_B T \Delta^2} \frac{\delta}{\theta k \bar{v}} e^{-\delta^2/2(\theta k \bar{v})^2} \quad (\text{I.4.3-7})$$

La dépendance en fréquence du gain de l'onde sonde présente donc la forme d'une dérivée de gaussienne, dont la demi-largeur $\theta k \bar{v}$ donne directement accès à la largeur Doppler du milieu, et donc à sa température T (Fig. I.4.3-2). Cette structure, décrite par une fonction impaire de δ , présente des caractéristiques très différentes de celles trouvées pour l'expérience discutée au §I.4.2. Elle reste invariante par changement du signe du désaccord à résonance, sa largeur est indépendante des paramètres du faisceau pompe, et son amplitude varie en I_0/Δ^2 . Ces caractéristiques correspondent en fait au cas de l'effet Raman stimulé entre niveaux discrets dont la largeur est due à une perturbation différente du pompage optique. Ceci n'est pas surprenant puisque l'on peut considérer l'action du réservoir comme une perturbation extérieure.

Comme nous le verrons au chapitre II, l'interprétation de ce type de résonance en termes de processus Raman stimulés n'est en fait pas totalement univoque, et il est également possible de la décrire dans un autre point de vue en termes de diffusion Rayleigh stimulée ! Cette ambiguïté, liée au fait que le continuum d'énergie fait intervenir les degrés de liberté *externes* de l'atome, conduit ainsi à préférer l'appellation de résonance "induite par le recul" pour ce type de structures [Guo92].

[Guo92] J. Guo, P. R. Berman, B. Dubetsky, et G. Grynberg, Phys. Rev. A **46**, 1426 (1992).

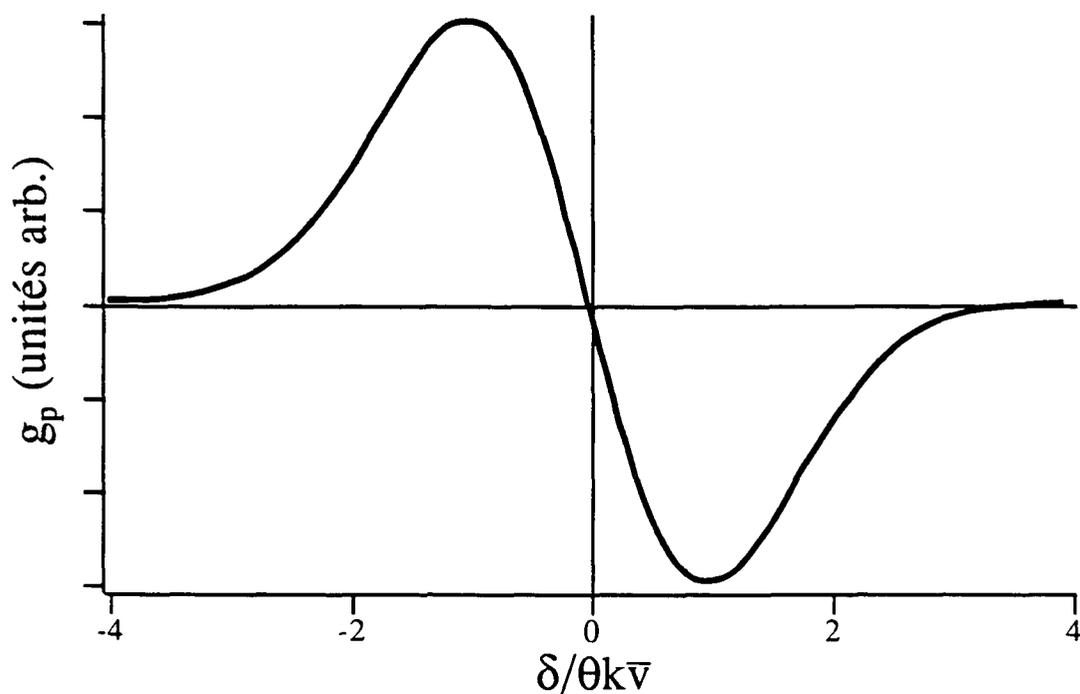


FIG. I.4.3-2 : Allure de la résonance Raman induite par le recul apparaissant au centre du spectre de transmission de la sonde.

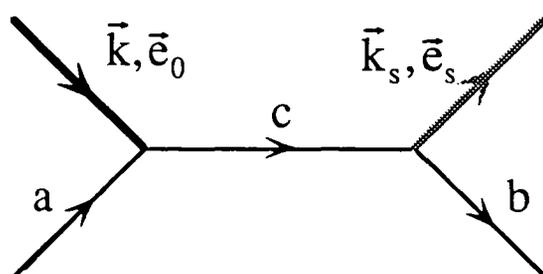
5. Conclusion

Le processus de diffusion Raman stimulée est connu de longue date dans les milieux atomiques et surtout moléculaires. Il est possible de déduire de la formule de Kramers-Heisenberg donnant la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée l'expression du gain linéique g_p d'un faisceau sonde interagissant avec un milieu Raman pompé par un laser intense. Dans le cas particulier où ce laser est accordé au voisinage d'une transition atomique entre un niveau fondamental et un niveau excité possédant plusieurs sous-niveaux Zeeman dégénérés et également peuplés en absence de toute perturbation, il est possible d'observer l'effet Raman stimulé en tirant parti des déplacements lumineux (qui lèvent la dégénérescence entre les sous-niveaux) et du processus de pompage optique (qui conduit à des différences de population entre les sous-niveaux) induits par l'onde pompe. Le spectre de transmission d'un faisceau sonde à travers un tel milieu s'exprime simplement en fonction du gain linéique g_p (proportionalité dans le cas d'un milieu peu dense), et résulte de la somme d'un ou plusieurs ensembles de deux résonances lorentziennes (l'une en absorption, l'autre en amplification) ayant des amplitudes différentes, et dont les lois de variation des amplitude, largeur et position en fonction des paramètres intensité et

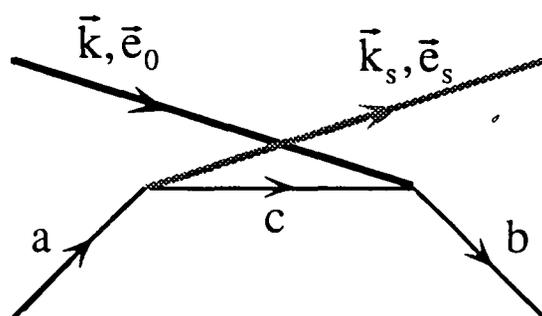
désaccord à résonance du laser pompe se déduisent de celles de g_p . Ces lois sont très différentes selon que le faisceau pompe participe seul aux modifications des caractéristiques du milieu (différences de populations et d'énergie entre niveaux, largeur des niveaux) ou si d'autres perturbations sont impliquées.

L'effet Raman stimulé peut également intervenir entre états appartenant au continuum d'énergie associé à la distribution d'impulsion d'un milieu atomique de température T (due au contact avec un réservoir). Il se manifeste sur le spectre de transmission de la sonde par une résonance Raman dite "induite par le recul" ayant la forme d'une dérivée de gaussienne, et dont la largeur donne accès à la température du milieu. Les lois de variation des caractéristiques de cette résonance sont celles attendues dans le cas de l'effet Raman entre niveaux discrets lorsque les propriétés du milieu sont déterminées par une perturbation extérieure au laser pompe.

FORMULE DE
KRAMERS-HEISENBERG



+



1. Présentation du problème

Nous considérons un système diffuseur dont les niveaux d'énergie sont représentés schématiquement sur la Fig. A.I-1, et nous cherchons à déterminer la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée d'un photon (laser) de fréquence ω , de vecteur d'onde \vec{k} et de polarisation \vec{e}_0 vers un photon (Stokes) de fréquence ω_s , de vecteur d'onde \vec{k}_s et de polarisation \vec{e}_s , associée à un changement de niveau d'énergie du centre diffuseur de $|a\rangle$ à $|b\rangle$.

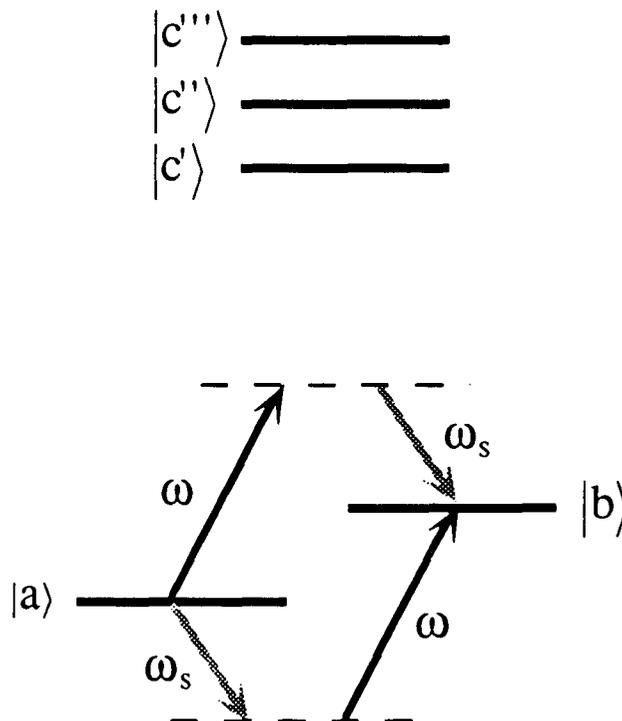


FIG. A.I-1 : Représentation schématique des niveaux d'énergie du centre diffuseur et du processus de diffusion Raman spontanée d'un photon laser ω vers un photon Stokes ω_s . Le système, initialement dans l'état fondamental $|a\rangle$, effectue une transition vers le niveau excité $|b\rangle$ par passage virtuel dans un état intermédiaire. Cette transition s'accompagne de l'absorption d'un photon pompe et de l'émission spontanée d'un photon Stokes. Le faisceau laser est très désaccordé vis-à-vis des transitions vers les autres niveaux d'énergie du système $|c\rangle$.

Comme on peut le voir sur la Fig. A.I-1, deux diagrammes contribuent à l'amplitude de diffusion, selon que le photon diffusé est émis avant ou après l'absorption du photon laser.

2. Calcul de l'amplitude de diffusion [Coh88a]

L'amplitude de diffusion est évaluée par une méthode perturbative basée sur la décomposition de l'Hamiltonien total H du système centre diffuseur-rayonnement, en une partie "non perturbée" H_0 dont les états et énergies propres sont connus, et d'une perturbation $W = H - H_0$. H_0 sera ici le Hamiltonien décrivant la somme des énergies du champ électromagnétique quantifié et du centre diffuseur. W sera le Hamiltonien d'interaction entre centre diffuseur et rayonnement dans l'approximation dipolaire électrique, en supposant pour simplifier les écritures que le centre diffuseur est placé à l'origine des coordonnées d'espace :

$$W = -\vec{D} \cdot \vec{E}_\perp(\vec{0}) \quad (\text{A.I.2-1})$$

avec le développement usuel de $\vec{E}_\perp(\vec{0})$ en modes (indiqués par j) :

$$\vec{E}_\perp(\vec{0}) = i \sum_j \sqrt{\frac{\hbar\omega_j}{2\varepsilon_0 V}} (a_j \vec{e}_j - a_j^\dagger \vec{e}_j^*) \quad (\text{A.I.2-2})$$

où V représente le volume de quantification du rayonnement.

L'amplitude de transition S_{fi} de l'état initial $|\varphi_i\rangle$ vers l'état final $|\varphi_f\rangle$ au bout d'un temps d'interaction T est donnée par :

$$S_{fi} = \delta_{fi} - 2\pi i \delta^{(T)}(E_f - E_i) \mathcal{T}_{fi} \quad (\text{A.I.2-3})$$

où $\delta^{(T)}$ est une fonction delta de largeur \hbar/T qui exprime la conservation de l'énergie non perturbée à \hbar/T près (incertitude liée au temps fini T d'interaction). En limitant le calcul perturbatif à l'ordre 2, \mathcal{T}_{fi} se réduit à :

$$\mathcal{T}_{fi} = \langle \varphi_f | W | \varphi_i \rangle + \langle \varphi_f | W \frac{1}{E_i - H_0 + i\zeta} W | \varphi_i \rangle \quad (\text{A.I.2-4})$$

où ζ est un infiniment petit positif.

Les états initial $|\varphi_i\rangle$ et final $|\varphi_f\rangle$ du processus de diffusion sont :

$$|\varphi_i\rangle = |a; \vec{k}, \vec{e}_0\rangle \quad (\text{A.I.2-5.a})$$

$$|\varphi_f\rangle = |b; \bar{k}_s, \bar{e}_s\rangle \quad (\text{A.I.2-5.b})$$

d'énergies :

$$E_i = E_a + \hbar\omega \quad (\text{A.I.2-6.a})$$

$$E_f = E_b + \hbar\omega_s \quad (\text{A.I.2-6.b})$$

Compte tenu de (A.I.2-1), (A.I.2-2) et (A.I.2-5), le premier terme de (A.I.2-4) est nul et \mathcal{T}_{fi} se réduit à :

$$\mathcal{T}_{fi} = \sum_c \frac{\langle b; \bar{k}_s, \bar{e}_s | W | c; 0 \rangle \langle c; 0 | W | a; \bar{k}, \bar{e}_0 \rangle}{E_a + \hbar\omega - E_c} + \frac{\langle b; \bar{k}_s, \bar{e}_s | W | c; \bar{k}, \bar{e}_0; \bar{k}_s, \bar{e}_s \rangle \langle c; \bar{k}, \bar{e}_0; \bar{k}_s, \bar{e}_s | W | a; \bar{k}, \bar{e}_0 \rangle}{E_a - \hbar\omega_s - E_c} \quad (\text{A.I.2-7})$$

où l'on distingue la contribution des deux processus (absorption-émission et émission-absorption) mentionnés au §A.I.1. Dans cette expression, $|0\rangle$ représente le vide de rayonnement. Le calcul explicite des éléments de matrice de W impliqués dans (A.I.2-7) conduit alors à l'expression suivante :

$$\mathcal{T}_{fi} = \frac{\hbar}{2\varepsilon_0 V} \sqrt{\omega\omega_s} \sum_c \frac{\langle b | \bar{D} \cdot \bar{e}_s | c \rangle \langle c | \bar{D} \cdot \bar{e}_0 | a \rangle}{E_a + \hbar\omega - E_c} + \frac{\langle b | \bar{D} \cdot \bar{e}_0 | c \rangle \langle c | \bar{D} \cdot \bar{e}_s | a \rangle}{E_a - \hbar\omega_s - E_c} \quad (\text{A.I.2-8})$$

qui, portée dans (A.I.2-3) (dont le premier terme est nul, les états initial et final étant par hypothèse différents), donne accès à l'amplitude de diffusion Raman spontanée.

3. Calcul de la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée : Formule de Kramers-Heisenberg

Le calcul de la probabilité de transition de $|\varphi_i\rangle$ à $|\varphi_f\rangle$, égale au module carré de l'amplitude de diffusion calculée au §A.I.2, fait intervenir le carré d'une fonction delta $\delta^{(T)}$ de largeur $1/T$, proportionnel à $T \delta^{(T)}$ [Coh88a]. Cette probabilité est donc proportionnelle à la durée d'interaction, ce qui permet de définir une probabilité de transition par unité de temps, que l'on trouve égale à [Coh88a] :

$$w_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar} |\mathcal{T}_{fi}|^2 \delta^{(\tau)}(E_f - E_i) \quad (\text{A.I.3-1})$$

En fait, l'état final n'étant pas normalisable (car appartenant à un continuum), il est nécessaire pour aboutir à une quantité ayant un sens physique, de définir la probabilité de transition par unité de temps vers un *groupe* d'états finals. Il est par exemple possible de définir ce groupe comme ayant un vecteur d'onde contenu dans un élément d'angle solide $d\Omega$. On obtient alors comme taux de transition élémentaire par unité de temps :

$$\frac{dw_{fi}}{d\Omega} = \frac{2\pi}{\hbar} |\mathcal{T}_{fi}|^2 \rho(E_f = E_i) \quad (\text{A.I.3-2})$$

où ρ est la densité d'états finals évaluée en $E_f = E_i$. Enfin, l'état initial appartenant également à un continuum, est non normalisable. Il est toutefois possible d'associer un flux incident à un tel état, et de définir alors le rapport entre la probabilité de transition par unité de temps de l'état $|\varphi_i\rangle$ vers un groupe d'états finals repérés par un élément d'angle solide $d\Omega$, et le flux incident associé à $|\varphi_i\rangle$. Ce rapport n'est autre que la section efficace différentielle de diffusion, qui est une quantité physique mesurable.

En utilisant l'expression de la densité d'état des photons dans le vide à la fréquence Stokes $\omega_s = \omega - \omega_{ba}$ [Rq.A.I-1] :

$$\rho(E_f = \hbar(\omega - \omega_{ba})) = \frac{V}{(2\pi)^3} \frac{(\hbar\omega_s)^2}{\hbar^3 c^3} \quad (\text{A.I.3-3})$$

ainsi que le flux incident de photons c/V , on déduit de (A.I.2-8), (A.I.3-2) et (A.I.3-3), l'expression de la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée :

$$\frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} = \frac{\omega \omega_s^3}{16\pi^2 \epsilon_0^2 \hbar^2 c^4} \left| \sum_c \frac{\langle b|\bar{D}\cdot\bar{e}_s|c\rangle\langle c|\bar{D}\cdot\bar{e}_0|a\rangle}{\omega_{ca} - \omega} + \frac{\langle b|\bar{D}\cdot\bar{e}_0|c\rangle\langle c|\bar{D}\cdot\bar{e}_s|a\rangle}{\omega_{cb} + \omega} \right|^2 \quad (\text{A.I.3-4})$$

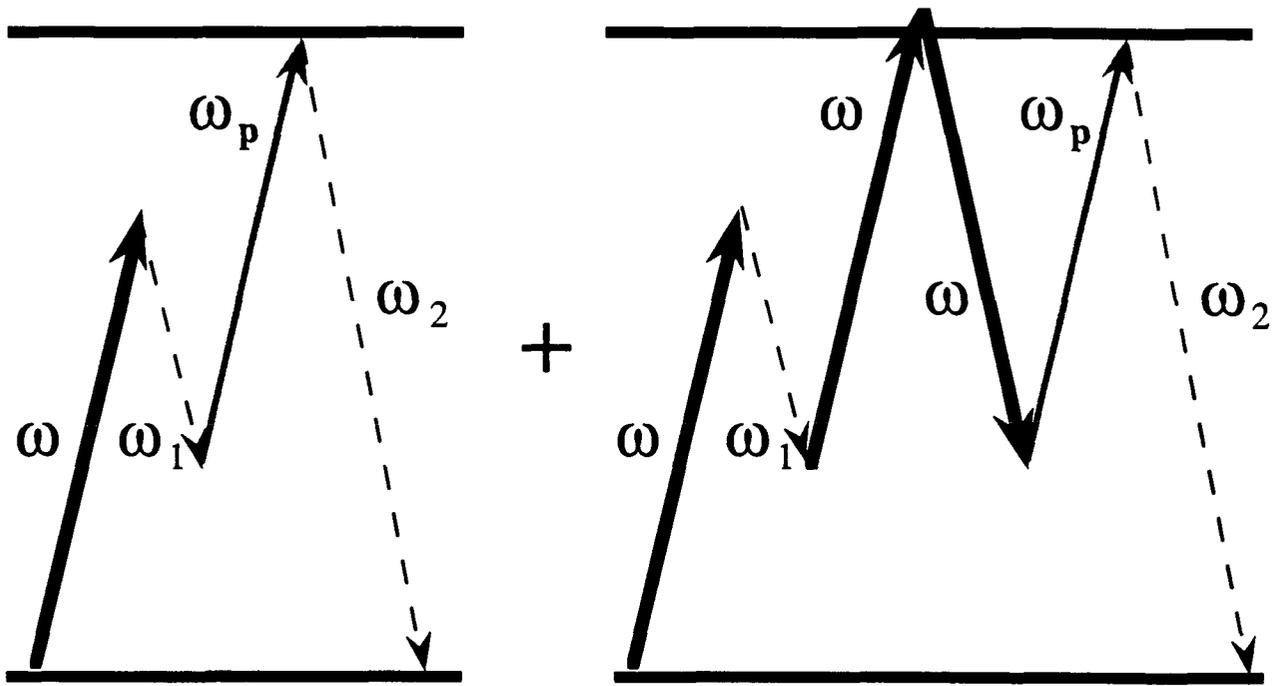
avec $\omega_s = \omega - \omega_{ba}$. (A.I.3-4) porte le nom de *formule de Kramers-Heisenberg* [Rq.A.I-2].

[Rq.A.I-1] Dans le cas d'un milieu matériel dont l'indice à la fréquence ω_s est η_s , il suffit de remplacer c par c/η_s .

[Rq.A.I-2] Cette expression diffère de celle obtenue dans le cas d'un milieu matériel d'indice η_s à la fréquence Stokes, par un facteur égale au cube de cet indice.

C H A P I T R E I I

D I F F U S I O N R A Y L E I G H S T I M U L É E



"L'art est fait pour troubler. La science rassure."

Georges Braque (1882-1963). Pensées sur l'art.

1. Introduction

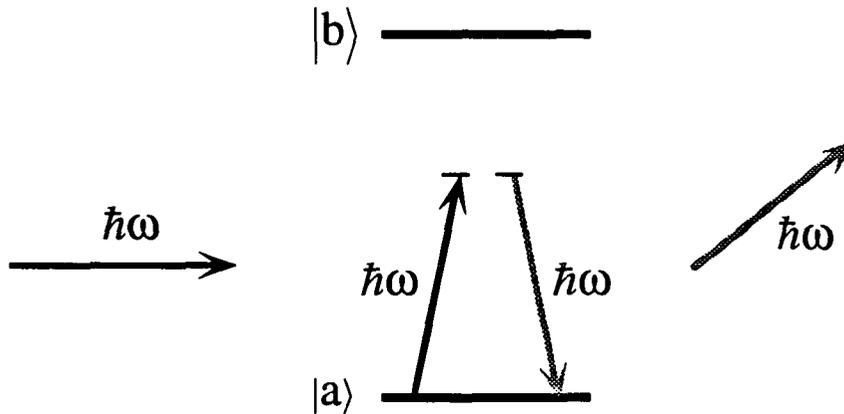


FIG. II.1-1 : Processus de diffusion Rayleigh spontanée d'un photon incident de fréquence ω .

La diffusion Rayleigh spontanée est un processus de diffusion *élastique* de la lumière à basse énergie, schématisé sur la Fig. II.1-1. Un photon incident de fréquence ω (petite devant les fréquences de résonance du système diffuseur) et de polarisation \vec{e}_0 , est diffusé en un photon de *même* fréquence et de polarisation \vec{e}_r , le centre diffuseur restant dans le même état d'énergie à l'issue du processus. De même que dans le cas de la diffusion Raman spontanée, on caractérise ce processus par une section efficace différentielle de diffusion, de la forme [Coh88b] :

$$\frac{d\sigma_{sp}^{Ray}}{d\Omega} = \frac{\omega^4}{16\pi^2 \epsilon_0^2 c^4 \hbar^2} \left| \sum_b \frac{\langle a | \vec{D} \cdot \vec{e}_r | b \rangle \langle b | \vec{D} \cdot \vec{e}_0 | a \rangle}{\omega_{ba} - \omega} + \frac{\langle a | \vec{D} \cdot \vec{e}_0 | b \rangle \langle b | \vec{D} \cdot \vec{e}_r | a \rangle}{\omega_{ba} + \omega} \right|^2 \tag{II.1-1}$$

où les notations sont identiques à celles du chapitre I.

Partant du principe qu'à tout processus spontané est associé un processus stimulé, il semble naturel de chercher à relier les effets Rayleigh spontané et stimulé par une procédure analogue à celle employée au §I.3 dans le cas de la diffusion Raman. Ce faisant, on se heurte immédiatement à une difficulté liée au caractère élastique de la diffusion Rayleigh, dont le corollaire est que les niveaux initial et final du processus de diffusion sont identiques (donc de même population), et qui conduit à une compensation exacte entre amplification et absorption stimulées de l'onde sonde ! Ce résultat ne signifie toutefois pas qu'il n'existe pas de diffusion

[Coh88b] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, InterEdition/Édition du CNRS, p. 499 (1988).

Rayleigh stimulée, mais plus simplement qu'à l'ordre 2 de la théorie des perturbations utilisé pour l'établissement de l'expression (II.1-1) (voir annexe A.I), les diagrammes associés à l'amplification et à l'absorption de la sonde se compensent exactement. Il est en fait nécessaire de considérer les contributions des diagrammes d'ordre plus élevé afin de mettre en évidence l'effet Rayleigh stimulé. Une telle approche, qui permet d'identifier sans ambiguïté l'origine physique des résonances Rayleigh, sera présentée au §II.4.1 dans le cas simple des atomes à deux niveaux.

Toutefois, cette démarche de type "théorie de la diffusion" n'étant généralement pas adaptée aux systèmes diffuseurs complexes pour lesquels le nombre de diagrammes à considérer devient rapidement rédhibitoire, nous lui préférons dans la suite une approche plus "globale", en termes de création sous l'effet combiné du champ pompe et de l'onde sonde de quantités observables macroscopiques (magnétisation, densité, moment quadrupolaire) modulées temporellement à la différence de fréquence $\delta = \omega_p - \omega$ entre sonde (ω_p) et pompes (ω), et sur lesquelles les ondes pompes viennent se diffracter, rayonnant un champ possédant les mêmes caractéristiques (fréquence, vecteur d'onde) que la sonde, et pouvant donc interférer avec elle. Ce processus d'interférence conduit à deux types d'effets, selon que l'onde diffractée est en phase ou en quadrature avec le champ sonde. Premièrement, la composante en *quadrature*, rayonnée par la *polarisation du milieu en phase* avec la sonde, est équivalente à une modification de l'indice de la sonde et ne modifie en particulier pas son intensité. Cette composante n'est donc pas impliquée dans le spectre de transmission de la sonde, mais contribue par exemple au spectre de conjugaison de phase. Deuxièmement, la composante en *phase*, rayonnée par la *polarisation du milieu en quadrature* avec la sonde, correspond aux phénomènes d'absorption et d'amplification Rayleigh stimulées conduisant à une modification de l'intensité de la sonde. Cette composante intervient à la fois dans les spectres de transmission et de conjugaison de phase de la sonde.

Or l'existence d'une composante de polarisation en *quadrature* avec l'excitation du milieu par l'onde sonde, à l'origine des résonances Rayleigh stimulées du spectre de transmission, signifie que le milieu diffuseur n'est pas capable de suivre instantanément la modulation temporelle imposée par la sonde à la fréquence de battement δ entre pompe et sonde (le milieu diffuseur est totalement insensible aux modulations à fréquence optique). L'aptitude du milieu à suivre l'excitation étant caractérisée par un ensemble de taux de réponse γ , il convient de distinguer plusieurs cas limites selon la grandeur relative de δ et γ [Rq.II-1]. Ainsi, si $\delta \ll \gamma$, le milieu est capable de s'adapter à chaque instant à l'excitation de la sonde, la polarisation du milieu est en phase à tout instant avec la sonde, et l'intensité de la sonde demeure inchangée en cours de

[Rq.II-1] Les taux de réponse d'un milieu ne sont autres que les taux d'évolution intervenant dans la relaxation d'un état quelconque du système vers son état stationnaire, de telle sorte que nous emploierons par la suite indifféremment le terme de taux de réponse ou de taux de relaxation.

propagation à travers le milieu. De même, lorsque $\delta \gg \gamma$, la modulation temporelle imposée par la sonde est trop rapide pour que le milieu puisse y répondre, de telle sorte qu'aucune polarisation (tant en phase qu'en quadrature) n'est induite dans le milieu. Finalement, la condition à satisfaire pour qu'apparaisse une résonance Rayleigh stimulée sur le spectre de transmission de la sonde, est que $\delta \approx \gamma$. Ceci signifie en particulier que la largeur des résonances Rayleigh stimulées, d'allure généralement dispersive, sera de l'ordre de grandeur d'un taux caractéristique de relaxation du milieu. Ainsi, alors que les processus Raman stimulés donnent essentiellement accès aux caractéristiques *statiques* du milieu (positions, largeurs et populations des niveaux d'énergie), l'effet Rayleigh stimulé fournit des informations sur la *dynamique* du milieu diffuseur. Les taux de réponse typiques d'un milieu diffuseur étant généralement très inférieurs aux fréquences de résonance de ce milieu, une autre conséquence est que les structures Rayleigh stimulées s'observeront au *centre des spectres* ($\delta \approx 0$), pour des fréquences de l'onde sonde beaucoup plus proches de la fréquence du champ pompe que dans le cas Raman.

Mentionnons pour terminer que ce type de résonance induite par la relaxation peut également se produire entre états d'énergies différentes et différemment peuplés. On peut alors montrer que contrairement aux résonances Raman qui font intervenir la *différence* de population entre de tels niveaux et ont une allure lorentzienne, les résonances induites par la relaxation (parfois appelées en anglais "two-wave mixing" ou "two-beam coupling resonances") font intervenir la *somme* des populations des niveaux et ont une forme dispersive. L'existence de telles résonances a été considérée pour la première fois par Bogdan, Downer et Bloembergen [Bog81]. Les structures Raman et Rayleigh, de même position et de même largeur, coexistent donc en principe toujours, mais les résonances induites par relaxation ont généralement une amplitude sensiblement plus faible et peuvent souvent être négligées lors de l'interprétation des structures latérales des spectres.

2. Caractérisation des résonances Rayleigh stimulées

Comme nous venons de le voir, la notion de *relaxation* dans le milieu diffuseur est un concept central dans les processus de diffusion Rayleigh stimulée. Nous nous intéressons plus particulièrement dans cette partie aux résonances Rayleigh stimulées observables sur le *spectre de transmission* d'une sonde à travers un milieu diffuseur. Nous commençons par montrer au §II.2.1

[Bog81] A. R. Bogdan, M. C. Downer et N. Bloembergen, Opt. Lett. 6, 348 (1981).

sur un cas élémentaire, qu'un processus de relaxation de taux γ conduit effectivement à une résonance située au centre du spectre, d'allure généralement dispersive, et de demi-largeur égale à γ . Nous envisageons ensuite au §II.2.2 le cas plus général d'un système dynamique complexe possédant de nombreux modes d'évolution associés à différents taux de relaxation, et nous montrons que les propriétés de la résonance Rayleigh sont alors intimement liées à la façon particulière dont la sonde excite un certain groupe de modes. Nous discutons enfin au §II.2.3 la nécessité de distinguer différents types de processus Rayleigh, et nous proposons une méthode de classification de ces processus selon trois critères fondamentaux portant sur les caractéristiques du milieu diffuseur, du phénomène de relaxation, et du processus d'excitation par la sonde.

2.1. Du processus de relaxation à la résonance Rayleigh stimulée

Nous considérons ici le cas d'une expérience pompe-sonde dans un milieu diffuseur simple où existe un seul processus de relaxation de taux γ [Rq.II-2], et nous montrons que ce processus se manifeste généralement sur le spectre de transmission de la sonde sous la forme d'une résonance dispersive de demi-largeur γ . Le milieu est supposé interagir avec un champ pompe scalaire E de fréquence optique ω et de vecteur d'onde \vec{k} :

$$E = E_0 e^{-i\omega t + i\vec{k}\cdot\vec{r}} + \text{c.c.} = 2E_0 \cos(\omega t - \vec{k}\cdot\vec{r}) \quad (\text{II.2.1-1})$$

et une onde sonde E_p de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$ très proche de ω , et de vecteur d'onde \vec{k}_p :

$$E_p = \varepsilon E_0 e^{-i(\omega+\delta)t + i\vec{k}_p\cdot\vec{r}} + \text{c.c.} \quad (\text{II.2.1-2})$$

où $\varepsilon \ll 1$ est le petit paramètre caractéristique d'une expérience pompe-sonde, égal au rapport des amplitudes des ondes sonde et pompe. L'interaction simultanée avec ces champs induit dans le milieu diffuseur une polarisation P :

$$P = \varepsilon_0 \chi E_0 e^{-i\omega t + i\vec{k}\cdot\vec{r}} + \text{c.c.} \quad (\text{II.2.1-3})$$

La susceptibilité χ est, au premier ordre en ε , solution de l'équation d'évolution :

$$\dot{\chi} + \gamma(\chi - \chi_{st}^{(0)}) = \varepsilon \beta_p |E_0|^2 e^{-i\delta t + i(\vec{k}_p - \vec{k})\cdot\vec{r}} + \varepsilon \beta_R |E_0|^2 e^{i\delta t - i(\vec{k}_p - \vec{k})\cdot\vec{r}} \quad (\text{II.2.1-4})$$

[Rq.II-2] Nous rappelons que l'existence d'un tel processus de relaxation est une condition *nécessaire* à l'établissement d'un régime *stationnaire* dans le milieu diffuseur, et qu'il est donc implicitement présent dans tous les systèmes à l'équilibre considérés ici.

où $\chi_{st}^{(0)}$ est la valeur stationnaire de la susceptibilité en l'absence de sonde, et γ le taux caractéristique du processus de relaxation [Rq.II-3]. Les termes du second membre de l'Eq. (II.2.1-4) décrivent la modification de la susceptibilité du milieu sous l'influence de l'onde sonde. Des exemples permettant de comprendre la signification des paramètres $\beta_{\mathcal{P}}$ et $\beta_{\mathcal{R}}$ seront donnés par la suite. Il apparaît clairement sur (II.2.1-4) que la valeur stationnaire de χ en présence de la sonde et au premier ordre en ε , est somme d'un terme constant et de deux termes modulés aux fréquences $\pm\delta$. Comme nous nous intéressons ici exclusivement au spectre de transmission de la sonde, nous ne retiendrons que la composante de la polarisation évoluant à la fréquence $\omega_p = \omega + \delta$, c'est-à-dire de façon équivalente à la composante $\chi_{\mathcal{P}}$ de la susceptibilité évoluant à la fréquence δ , et dont la valeur stationnaire se déduit immédiatement de (II.2.1-4) :

$$\chi_{\mathcal{P}} = \varepsilon \frac{\beta_{\mathcal{P}} |E_0|^2}{\gamma - i\delta} e^{-i\delta t + i(\bar{k}_p - \bar{k}) \cdot \bar{r}} \quad (\text{II.2.1-5})$$

La composante de la polarisation du milieu ayant les mêmes fréquence et vecteur d'onde que le faisceau sonde s'écrit alors :

$$P_{\mathcal{P}} = \varepsilon E_0 \frac{\varepsilon_0 \beta_{\mathcal{P}} |E_0|^2}{\gamma - i\delta} e^{-i\omega_p t + i\bar{k}_p \cdot \bar{r}} + \text{c.c.} \quad (\text{II.2.1-6})$$

d'où l'on déduit l'expression de la densité de puissance \mathcal{P} (normalisée à ε^2) transférée du milieu diffuseur vers l'onde sonde :

$$\mathcal{P} = -\frac{1}{\varepsilon^2} E_p \frac{dP_{\mathcal{P}}}{dt} = -2 \varepsilon_0 \omega \beta_{\mathcal{P}} |E_0|^4 \frac{\delta}{\delta^2 + \gamma^2} \quad (\text{II.2.1-7})$$

où l'on a supposé $\beta_{\mathcal{P}}$ réel (ce qui est généralement une bonne approximation). Comme annoncé, le spectre de transmission de la sonde présente donc une résonance centrée en $\delta = 0$, d'allure dispersive et de demi-largeur γ [Rq.II-4]. La sonde subit donc un phénomène d'extra-amplification et d'extra-absorption de part et d'autre de $\delta = 0$, sans qu'il soit *a priori* possible de déterminer si l'amplification correspond aux fréquences Stokes ou anti-Stokes. On s'assure en outre que pour $\delta \approx 0$ (le milieu suit parfaitement la modulation de la sonde), et pour $\delta \gg \gamma$ (le milieu est incapable de suivre la modulation temporelle trop rapide imposée par la sonde), le transfert de puissance vers l'onde sonde tend bien vers zéro.

[Rq.II-3] Les indices \mathcal{P} et \mathcal{R} font respectivement référence au spectre de transmission caractérisé par le transfert de puissance \mathcal{P} des atomes vers l'onde sonde, et au spectre de conjugaison de phase impliquant le coefficient de réflexion \mathcal{R} de conjugaison de phase (voir §R.5).

Nous concluons en notant que le processus de gain Rayleigh de la sonde peut se produire dans un milieu non inversé, et constitue donc le prototype même du phénomène d'amplification sans inversion de population.

2.2. Modes propres d'évolution et spectres Rayleigh

Après avoir montré au §II.2.1 comment un processus de relaxation élémentaire conduit à une résonance sur le spectre de transmission de la sonde, nous envisageons ici le cas d'un système diffuseur complexe possédant de nombreux degrés de liberté internes et externes, éventuellement couplés, dont les propriétés dynamiques ne sont pas réductibles à un seul mode de relaxation de taux γ . Il est alors nécessaire de considérer l'ensemble des modes propres dynamiques du système ρ_λ , associés à des taux d'évolution λ (éventuellement complexes), dont chacun est l'analogie du processus de relaxation unique précédemment considéré, et pouvant donc donner lieu à une résonance de demi-largeur $\text{Re}(-\lambda)$. Les propriétés de la résonance Rayleigh résulteront alors de la façon particulière dont la sonde excitera certains modes dynamiques plutôt que d'autres. Nous proposons ici une démarche "modale" permettant de caractériser entièrement les spectres Rayleigh, et tenant compte des caractéristiques les plus générales des systèmes diffuseurs que nous serons amenés à considérer par la suite.

a. Position du problème

Nous considérons un système diffuseur complexe interagissant avec un champ pompe de fréquence ω :

$$\bar{E} = E_0 \bar{\xi}(\bar{r}) e^{-i\omega t} + \text{c.c.} \quad (\text{II.2.2-1})$$

où $\bar{\xi}(\bar{r})$ décrit la polarisation et la dépendance spatiale du champ pompe, résultant éventuellement de la superposition de plusieurs faisceaux lasers de même fréquence. Le système interagit également avec une onde sonde de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$ proche de ω :

$$\bar{E}_p = \varepsilon E_0 \bar{e}_p(\bar{r}) e^{-i(\omega+\delta)t} + \text{c.c.} \quad (\text{II.2.2-2})$$

où $\varepsilon \ll 1$ est le petit paramètre caractéristique de l'expérience pompe-sonde, égal au rapport des amplitudes des ondes sonde et pompes, et $\bar{e}_p(\bar{r})$ désigne la polarisation et la dépendance spatiale du champ sonde. L'interaction simultanée avec ces ondes induit dans le milieu diffuseur une

[Rq.II-4] Dans le cas d'un milieu optiquement mince, le transfert de puissance de l'onde pompe vers l'onde sonde est en effet directement proportionnel à \mathcal{P} (voir §R.5).

polarisation possédant une composante P_p rayonnant un champ ayant mêmes fréquence, polarisation et vecteur d'onde que le faisceau sonde. Cette polarisation, qui est une quantité macroscopique, s'exprime très généralement en fonction d'une quantité ρ de nature *statistique*, décrivant entièrement les propriétés macroscopiques du milieu diffuseur (température, densité, degrés de liberté de vibration et rotation, magnétisation, moment quadrupolaire...):

$$P_p = \mathcal{G}(\rho) \quad (\text{II.2.2-3})$$

où \mathcal{G} est une fonction linéaire de ρ . Il est en outre souvent possible de faire apparaître dans $\mathcal{G}(\rho)$ des quantités macroscopiques ayant un sens physique clair, et qui permettent de mieux cerner les mécanismes de transfert de puissance des ondes pompes vers l'onde sonde, à l'origine des résonances Rayleigh. Notons que dans le cas des systèmes atomiques, ρ n'est autre que la matrice densité des atomes, et \mathcal{G} fait alors intervenir les observables densité atomique (donnant lieu au phénomène de diffraction de Bragg sans rotation de polarisation), magnétisation (associée à l'effet Faraday), et moment quadrupolaire (conduisant à des effets de biréfringence).

La dynamique du milieu diffuseur se décrit alors par une équation portant sur la quantité statistique ρ , et qui prend la forme :

$$\dot{\rho} = \mathcal{L}(\bar{\xi} + \varepsilon \bar{e}_p e^{-i\delta t}, \bar{\xi}^* + \varepsilon \bar{e}_p^* e^{i\delta t}) \cdot \rho \quad (\text{II.2.2-4})$$

où \mathcal{L} est un opérateur linéaire, fonction des paramètres du champ électrique total (pompes et sonde), décrivant les processus d'interaction entre centres diffuseurs et rayonnement [Rq.II-5]. Cet opérateur ne possède pas de dépendance à la fréquence optique ω , beaucoup trop élevée pour que le système y soit sensible.

Le calcul du spectre de transmission de la sonde se résume donc en la résolution de l'Eq. (II.2.2-4) en présence du champ sonde, résolution qui s'effectue par une méthode perturbative en fonction du petit paramètre ε . On commence ainsi par réécrire l'Eq. (II.2.2-4) en développant \mathcal{L} jusqu'au premier ordre en ε :

$$\dot{\rho} = \left[\mathcal{L}(\bar{\xi}, \bar{\xi}^*) + \varepsilon \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \bar{\xi}} \cdot \bar{e}_p e^{-i\delta t} + \varepsilon \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \bar{\xi}^*} \cdot \bar{e}_p^* e^{i\delta t} \right] \cdot \rho \quad (\text{II.2.2-5})$$

[Rq.II-5] L'opérateur \mathcal{L} dépend en fait de *tous* les paramètres du champ total, tels que l'amplitude E_0 et la fréquence ω . Il peut également dépendre de paramètres extérieurs aux champs laser, tels que la température imposée par un thermostat au milieu. Nous avons ici restreint quelque peu les notations pour la clarté des expressions.

La forme de cette équation incite alors à chercher la solution stationnaire ρ_{st} de (II.2.2-5) sous la forme :

$$\rho_{st} = \rho_{st}^{(0)} + \varepsilon \rho_{st}^{(1)} e^{-i\delta t} + \varepsilon (\rho_{st}^{(1)})^\dagger e^{i\delta t} \quad (\text{II.2.2-6})$$

En portant (II.2.2-6) dans (II.2.2-5), et en identifiant les termes de même ordre en ε , on est alors amené à une résolution en deux étapes.

b. Caractéristiques dynamiques du milieu en l'absence de sonde

La première étape (ordre 0 en ε) consiste en la détermination de l'état stationnaire $\rho_{st}^{(0)}$ en l'absence de sonde. Nous supposons possible la diagonalisation complète de l'opérateur $\mathcal{L}(\bar{\xi}, \bar{\xi}^*)$, qui offre le grand avantage d'introduire les modes propres d'évolution caractérisant entièrement les propriétés dynamiques du système diffuseur considéré, et qui seront utilisées lors de la deuxième étape du calcul de ρ_{st} . La diagonalisation consiste à résoudre une équation du type :

$$\mathcal{L}(\bar{\xi}, \bar{\xi}^*) \cdot \rho_\lambda = -(\gamma_\lambda + i\omega_\lambda) \rho_\lambda \quad (\text{II.2.2-7})$$

où ρ_λ représente un mode propre dynamique du système diffuseur, associé à la valeur propre $-\gamma_\lambda - i\omega_\lambda$ (avec $\gamma_\lambda \geq 0$ et ω_λ réels), éventuellement complexe (mode de relaxation-oscillation). Dans la mesure où l'on se restreint ici à des systèmes possédant un état d'équilibre, l'existence et l'unicité de l'état stationnaire assure qu'il existe une et une seule de ces valeurs propres exactement nulle, dont le mode propre associé correspond à l'état stationnaire du milieu (moyennant une normalisation appropriée). La partie réelle des autres valeurs propres est strictement négative, pour des raisons physiques évidentes, et correspond aux taux de relaxation des modes dynamiques associés.

A ce stade du calcul, nous avons acquis une connaissance complète des propriétés dynamiques du système diffuseur qui est indispensable, comme nous l'avons vu précédemment, pour la caractérisation de l'effet Rayleigh stimulé. Il reste alors à identifier les modes particuliers contribuant aux résonances du spectre de transmission de la sonde. C'est ce que nous allons faire dans la seconde étape dédiée au calcul de $\rho_{st}^{(1)}$.

c. Excitation dynamique du système diffuseur par l'onde sonde

La seconde étape du calcul de ρ_{st} (ordre 1 en ϵ) se ramène à la résolution de l'équation :

$$\left[i\delta + \mathcal{L}(\bar{\xi}, \bar{\xi}^*) \right] \rho_{st}^{(1)} = - \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \bar{\xi}} \cdot \bar{e}_p \right] \cdot \rho_{st}^{(0)} \quad (\text{II.2.2-8})$$

où $\rho_{st}^{(1)}$ apparaît clairement comme la réponse dynamique du milieu en présence des ondes pompes seules (entièrement caractérisé par l'opérateur $\mathcal{L}(\bar{\xi}, \bar{\xi}^*)$, comme nous l'avons vu au §II.2.2.b précédent), sous l'action d'un terme source associé à l'excitation par la sonde (dont les caractéristiques sont entièrement contenues dans le second membre de (II.2.2-8)). Il apparaît alors que les modes de relaxation qui vont contribuer significativement à la structure Rayleigh du spectre de transmission de la sonde, sont ceux qui seront suffisamment excités par le terme source de (II.2.2-8). Il est donc utile de décomposer ce terme sur la base des modes propres ρ_λ :

$$- \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \bar{\xi}} \cdot \bar{e}_p \right] \cdot \rho_{st}^{(0)} = \sum_{\lambda} s_{\lambda} \rho_{\lambda} \quad (\text{II.2.2-9})$$

où s_{λ} décrit l'efficacité avec laquelle les différents modes propres d'évolution sont excités par la sonde [Rq.II-6]. On obtient alors immédiatement l'expression de $\rho_{st}^{(1)}$:

$$\rho_{st}^{(1)} = \sum_{\lambda} \frac{s_{\lambda}}{-\gamma_{\lambda} + i(\delta - \omega_{\lambda})} \rho_{\lambda} \quad (\text{II.2.2-10})$$

d. Allure du spectre Rayleigh

En portant (II.2.2-10) dans (II.2.2-3), et par comparaison avec (II.2.1-6) et (II.2.1-7), on voit clairement que dans le cas général d'un système diffuseur complexe, la structure Rayleigh stimulée va résulter d'une somme de contributions des différents modes propres d'évolution excités significativement par la sonde, et qui se manifestent individuellement sous la forme d'une résonance centrale de largeur γ_{λ} , d'allure généralement dispersive. En fait, l'existence de modes dynamiques de relaxation-oscillation, associés à des valeurs propres $-\gamma_{\lambda} - i\omega_{\lambda}$ de partie imaginaire non nulle, peut conduire à des déviations sensibles par rapport à une structure dispersive. Ainsi, même dans le cas d'un opérateur dynamique \mathcal{L} réel (les modes de relaxation-

[Rq.II-6] Il faut toutefois prendre garde à la normalisation des modes ρ_{λ} si l'on veut comparer directement l'importance relative des différents modes dans la structure Rayleigh par comparaison des valeurs de s_{λ} .

oscillation apparaissent alors par paires complexes conjuguées) et d'un terme source réel (les coefficients s_λ correspondant aux différentes paires sont alors complexes conjugués), la résonance centrale devient dissymétrique par rapport à $\delta=0$, bien que s'annulant à l'origine (disparition de la composante en quadrature dans $\rho_{st}^{(1)}$ pour $\delta=0$). Nous aurons l'occasion de voir au chapitre III plusieurs exemples de telles résonances. Finalement, la structure globale pourra selon les cas présenter des allures très différentes, et dépendra uniquement du choix particulier de polarisation et de direction de propagation de la sonde.

2.3. Classification des différents effets Rayleigh stimulés

Si, comme nous l'avons vu précédemment, l'effet Rayleigh stimulé est toujours associé à l'existence de modes propres de relaxation excités par une sonde, ses caractéristiques (forme et largeur des résonances), et son origine (à l'échelle microscopique) présentent une très grande variabilité d'un milieu diffuseur à un autre. Il est cependant utile de tenter une classification des différentes résonances Rayleigh observables sur les spectres de transmission d'une sonde à travers un milieu diffuseur pompé par un ou plusieurs lasers, cette classification devant être plus particulièrement adaptée au cas des milieux atomiques gazeux dilués étudiés par la suite. Nous proposons d'articuler cette classification selon les trois critères résumés dans le Tableau II.2.3-1.

Nous avons préféré distinguer clairement les cas des milieux atomiques et des systèmes moléculaires dont les résonances Rayleigh stimulées ont des origines physiques généralement très différentes. Il nous a en effet semblé plus opportun de dégager précisément les caractéristiques propres à chaque cas, plutôt que d'essayer de chercher à tout prix des analogies, qui ne pourraient être obtenues qu'au prix d'une formalisation mathématique pouvant nuire à la compréhension physique des différents processus. Nous espérons avoir ainsi réussi à dégager une classification aussi peu contraignante que possible, mais permettant de cerner facilement les différences essentielles entre les processus Rayleigh observés à ce jour dans les milieux atomiques, tout en laissant la place aux processus plus "traditionnels" observés dans les milieux moléculaires.

Notons enfin que nous ne considérerons pas dans ce mémoire le cas de l'effet Rayleigh stimulé (ou mélange à deux ondes) des milieux photoréfractifs, bien qu'il puisse également s'intégrer dans notre classification.

1. Milieu diffuseur
<p>a. Propriétés physiques du milieu : solide, liquide, gazeux ; pression, température.</p> <p>b. Nature et propriétés des centres diffuseurs : ion, molécule, atome ; position et largeur des niveaux d'énergie, nombre de degrés de liberté.</p> <p>c. Dans la mesure seulement où les ondes pompes interviennent dans les points a ou b, caractéristiques de celles-ci : nombre de faisceaux , polarisation, direction de propagation, fréquence, intensité.</p>
2. Largeur de résonance
<p>a. Échelle de temps caractéristique des processus de relaxation.</p> <p>b. Nature de ces processus : transport de chaleur, collisions, pompage optique, friction.</p> <p>c. Dans la mesure seulement où les ondes pompes interviennent dans les points a ou b, caractéristiques de celles-ci : nombre de faisceaux , polarisation, direction de propagation, fréquence, intensité.</p>
3. Forme de résonance
<p>a. Mécanisme microscopique d'excitation par la sonde : électrostriction, pompage optique,...</p> <p>b. Dans la mesure seulement où l'onde sonde intervient dans le point a, caractéristiques de celle-ci : polarisation et direction de propagation.</p> <p>c. Accessoirement : nature du processus de diffraction des ondes pompe sur le milieu modifié par la sonde : effet Faraday, diffraction de Bragg, biréfringence...</p>

Tableau II.2.3-1 : Critères de classification des processus Rayleigh stimulés.

3. Diffusion Rayleigh stimulée dans les milieux moléculaires

Bien que l'objet de notre étude soit de classer les différents processus Rayleigh stimulés ayant lieu dans les milieux atomiques gazeux, il nous a paru intéressant, ne serait-ce que d'un point de vue historique, de rappeler brièvement les différents effets Rayleigh répertoriés dans les milieux moléculaires. On trouve traditionnellement dans la littérature une distinction entre deux grandes familles d'effets Rayleigh stimulés, qui se différencient par les échelles de temps des processus de relaxation mis en jeu (critère 2 de notre classification), et dont les dénominations consacrées sont "Rayleigh-wing", de temps de relaxation très courts, variant selon les milieux de 10^{-10} à 10^{-13} s, et apparaissant sur les spectres comme une structure très étalée, dans l'aile (d'où son nom) des résonances "Rayleigh" proprement dites, dont le temps de relaxation typique est de 10^{-8} s, et qui ont donc la forme de résonances beaucoup plus piquées, au centre des spectres. Nous allons considérer ici successivement ces deux types d'effet Rayleigh en insistant sur leur origine physique, de façon à les situer par rapport aux différents critères de notre classification. On trouvera une description plus détaillée de ces effets dans [Kai72] et [Boy92].

3.1. Effet "Rayleigh-wing" stimulé

L'effet "Rayleigh-wing" stimulé fut observé expérimentalement pour la première fois en 1965 par Mash *et al.* [Mas65], puis par Cho *et al.* en 1967 [Cho67], et décrit théoriquement par Bloembergen et Lallemand [Blo66], ainsi que par Chiao *et al.* [Chi66]. L'origine de ce processus de diffusion Rayleigh stimulée réside dans la tendance qu'ont les molécules anisotropes (CS_2 , benzène, acétone...) à s'orienter le long de la direction du champ électrique d'une onde laser, entraînant une modification de l'indice de réfraction du milieu. Cet effet peut aisément se comprendre sur le cas d'une molécule ayant la forme d'un cigare (comme CS_2), et pour laquelle la polarisabilité α_{\parallel} vue par une onde laser polarisée le long du grand axe de symétrie de cette molécule est plus grande que la celle α_{\perp} vue par un champ polarisé orthogonalement à cet axe (Fig. II.3.1-1).

-
- [Kai72] W. Kaiser et M. Maier, in *Laser Handbook*, édité sous la direction scientifique de F. T. Arecchi et E. O. Schultz-Dubois, North-Holland (1972).
 [Boy92] R. W. Boyd, in *Nonlinear Optics*, Academic Press (1992).
 [Mas65] D. I. Mash, V. V. Morozov, V. S. Starunov, et I. L. Fabelinskii, *JETP Lett.* **2**, 25 (1965).
 [Cho67] C. W. Cho, N. D. Foltz, D. H. Rank, et T. A. Wiggins, *Phys. Rev. Lett.* **18**, 107 (1967).
 [Blo66] N. Bloembergen et P. Lallemand, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 81 (1966).
 [Chi66] R. Y. Chiao, P. L. Kelley, et E. Garmire, *Phys. Rev. Lett* **17**, 1158 (1966).

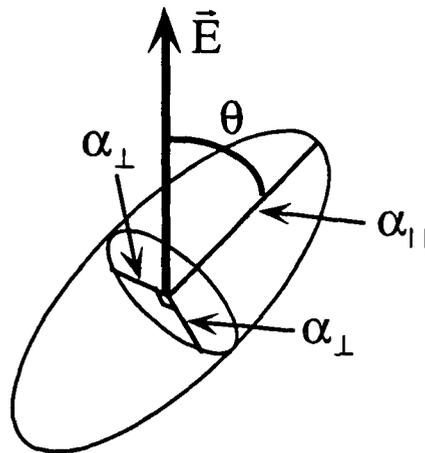


FIG. II.3.1-1 : Molécule en forme de cigare présentant une anisotropie de polarisabilité responsable du phénomène d'orientation de la molécule le long du champ électrique laser.

Du fait de cette anisotropie de polarisabilité, le dipôle \vec{d} induit dans une telle molécule par le champ pompe \vec{E} (polarisé linéairement) ne sera généralement pas parallèle à ce champ, si bien que la molécule sera soumise à un couple :

$$\vec{C} = \vec{d} \wedge \vec{E} \quad (\text{II.3.1-1})$$

dont l'effet est d'orienter la molécule le long du champ électrique. Cette tendance des molécules à s'aligner le long d'une direction privilégiée est toutefois atténuée par l'agitation thermique, qui tend à rendre l'orientation des molécules totalement aléatoire. L'état stationnaire du milieu, résultant d'un équilibre entre ces deux effets, peut être caractérisé par la fonction de distribution de Maxwell-Boltzmann $f(\theta, \varphi)$ pour les angles θ et φ des coordonnées sphériques, repérant la position du grand axe de la molécule par rapport au champ laser (Fig. II.3.1-1). On peut montrer que cette fonction de distribution, analogue à la fonction p considérée au §II.2.2, est de la forme :

$$f(\theta, \varphi) \propto \exp\left[\frac{1}{6}(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})(3\cos^2\theta - 1)\overline{E^2}/k_B T\right] \quad (\text{II.3.1-2})$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T la température du milieu, la barre représentant la moyenne temporelle sur un temps long devant la période optique (l'orientation des molécules ne pouvant suivre à une fréquence optique, le milieu n'est sensible qu'à l'intensité moyenne du champ laser).

D'autre part, l'évolution dynamique de cette distribution est caractérisée par un temps τ décrivant la désorientation de ces molécules. Il est donné par la théorie de Debye des molécules polaires [Deb29] :

[Deb29] P. Debye, in *Polar Molecules*, Dover Publications Inc., New York (1929).

$$\tau = \frac{4\pi a^3}{k_B T} \eta \quad (\text{II.3.1-3})$$

où η est la viscosité du fluide, et a le rayon moyen de la molécule. Ce temps varie sensiblement d'un fluide à un autre, son ordre de grandeur typique étant la picoseconde.

La mise en évidence de l'effet "Rayleigh-wing" s'effectue alors de la manière suivante. On éclaire le milieu moléculaire à l'aide d'une onde pompe de fréquence ω polarisée linéairement le long de la direction x . Cette onde a pour effet d'aligner les molécules selon son champ électrique par le processus que nous venons de discuter. On fait également interagir ce milieu orienté avec une onde sonde de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$ polarisée linéairement le long de la direction y (Fig. II.3.1-2). Au premier ordre en l'amplitude de la sonde, on peut distinguer deux effets de la sonde sur les molécules. D'une part, le champ électrique de la sonde va induire un dipôle dans la molécule (proportionnel à la polarisabilité α_{\perp}) ayant une direction différente de celle du champ pompe, et créant ainsi un couple modulé à la fréquence δ . D'autre part, le dipôle induit dans les molécules par l'onde pompe (proportionnel à la polarisabilité α_{\parallel}) n'étant pas dirigé selon la direction du champ sonde, les molécules vont également subir de la part de l'onde sonde un couple, lui aussi modulé à la fréquence δ . La somme de ces deux contributions étant non nulle du fait de l'anisotropie de polarisabilité de la molécule, l'effet global de la sonde va être une modulation temporelle à la fréquence δ de l'orientation moyenne des molécules autour de la direction du champ pompe.

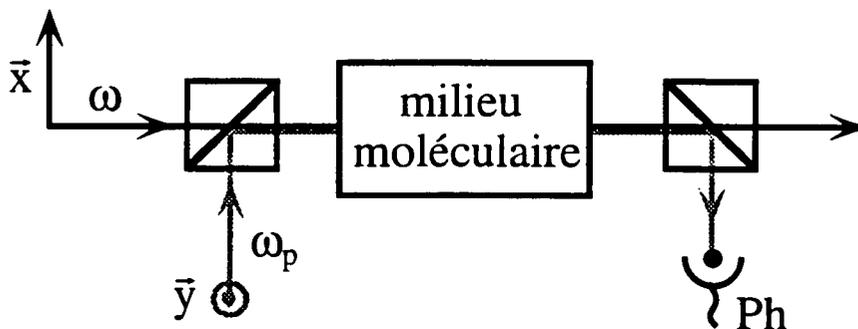


FIG. II.3.1-2 : Schéma expérimental pour l'observation de l'effet "Rayleigh-wing". Deux faisceaux pompe (ω) et sonde (ω_p) ayant des polarisations linéaires orthogonales se propagent à travers un milieu contenant des molécules anisotropes de type CS_2 . A la sortie de la cellule, l'intensité du faisceau sonde est mesurée en fonction de ω_p au moyen d'une photodiode Ph, et présente une résonance "Rayleigh-wing" au voisinage de $\omega_p = \omega$, de largeur de l'ordre de 10 à 100 GHz.

Une autre façon d'interpréter la dynamique d'orientation des molécules est de remarquer que le champ laser total (pompe et sonde) a une direction variant dans l'espace à la fréquence δ , le long de laquelle les molécules cherchent constamment à s'aligner. Comme nous l'avons vu au

§II.2.1, le passage entre la situation où les molécules suivent adiabatiquement le champ électrique et le cas où elles restent insensibles aux variations de champ, se produit pour $|\delta| \approx 1/\tau$. Comme le temps caractéristique de réorientation des molécules τ est de l'ordre de la picoseconde, on s'attend à ce que la résonance "Rayleigh-wing" stimulée ait une largeur de l'ordre de 10 à 100 GHz, proportionnelle à la température et inversement proportionnelle à la viscosité du milieu (d'après l'Eq. (II.3.1-3)). L'origine physique du gain de la sonde est ici très simple : en créant une modification de l'orientation moyenne des molécules, l'onde sonde induit une biréfringence modulée à la fréquence δ dans le milieu. La transmission du champ pompe de fréquence ω et polarisé linéairement selon x dans ce milieu dont la biréfringence varie temporellement, conduit à un champ de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$ de polarisation elliptique, dont la composante selon y interfère avec l'onde sonde et modifie son intensité. Les principales caractéristiques de l'effet "Rayleigh-wing" sont résumées dans le Tableau II.3.1-1.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Liquide, $T \approx 300$ K	Molécules anisotropes	—
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
Taux de désorientation de Debye 10-100 GHz	Viscosité, agitation thermique	—
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Couple réorientant les molécules	Polarisation orthogonale à celle de la pompe	Biréfringence

Tableau II.3.1-1 : Caractéristiques de l'effet "Rayleigh-wing".

Mentionnons pour finir que l'effet "Rayleigh-wing" peut également être considéré comme un effet Raman stimulé entre états *rotationnels* de la molécule. Toutefois, ces états ne sont pas

résolus dans le fluide, car l'élargissement lié au processus de relaxation est très supérieur à la séparation des niveaux. La différence d'énergie $\hbar\delta$ liée au changement de niveau de rotation des molécules est ainsi évacuée par le mécanisme d'amortissement.

3.2. Effet "Rayleigh" stimulé

Les effets "Rayleigh" et Brillouin stimulés sont traditionnellement associés dans les ouvrages traitant des processus stimulés dans les milieux moléculaires [Rq.II-7]. La raison en est qu'ils décrivent tous deux des phénomènes de diffusion de la lumière par des inhomogénéités de quantités thermodynamiques. La distinction entre ces deux effets se fait sans ambiguïté en choisissant l'entropie S et la pression p comme variables thermodynamiques indépendantes. On désigne alors par *effet "Rayleigh"* les mécanismes de diffusion liés aux *fluctuations isobares d'entropie*, et par *effet Brillouin* les processus au cours desquels la lumière est diffusée par des *fluctuations isentropiques de pression* (diffusion sur des ondes acoustiques), les variations correspondantes de la susceptibilité électrique χ du milieu étant respectivement $(\partial\chi/\partial S)_p$ et $(\partial\chi/\partial p)_S$. Toutefois, il est plus commode pour le traitement théorique et l'interprétation physique des résultats, de travailler avec les variables densité massique μ et température T comme quantités thermodynamiques indépendantes, qui forment ensemble l'analogie de la fonction p considérée au §II.2.2. On montre que ces deux approches peuvent être reliées à l'aide de relations de la forme [Cum66] :

$$\left(\frac{\partial\chi}{\partial S}\right)_p = \frac{\bar{T}}{C_p \bar{\mu} v_s} \left[\bar{\mu} \beta_T \left(\frac{\partial\chi}{\partial\mu}\right)_T + \left(\frac{\partial\chi}{\partial T}\right)_\mu \right] \quad (\text{II.3.2-1})$$

et une expression similaire pour $(\partial\chi/\partial p)_S$. C_p est la chaleur spécifique à pression constante, v_s est la vitesse du son dans le milieu, β_T est le coefficient de dilatation thermique, et les barres désignent la valeur moyenne dans le milieu. Le second terme entre crochets de (II.3.2-1), qui est associé à la dépendance explicite en température de la susceptibilité électrique du milieu, est généralement suffisamment petit pour que l'on puisse le négliger sans faire une erreur de plus de quelques % [Bat69]. Il en résulte que l'effet "Rayleigh" dépend essentiellement de la variation de la susceptibilité avec la densité, et diffère de l'effet Brillouin par le fait qu'aucune onde acoustique n'est impliquée dans les fluctuations de densité.

[Rq.II-7] L'emploi des guillemets pour désigner l'effet "Rayleigh" moléculaire a pour but d'effectuer la distinction entre cet effet caractéristique des molécules et le processus plus général qui le sous-tend.

[Cum66] H. Z. Cummins et R. W. Gammon, *J. Chem. Phys.* **44**, 2785 (1966).

[Bat69] I. P. Batra et R. H. Enns, *Phys. Rev.* **185**, 396 (1969).

On distingue généralement deux types d'effet "Rayleigh" selon l'origine de ces fluctuations. Ce sont d'une part l'effet Rayleigh *électrostrictif* stimulé, qui correspond à la diffusion de la lumière par des fluctuations de densité isobares induites par le processus d'électrostriction, et d'autre part l'effet Rayleigh *thermodiffusif* stimulé, qui décrit le processus de diffusion de la lumière par des fluctuations de densité isobares dues à la dilatation thermique après échauffement local du milieu par absorption de photons lasers. Notre but n'étant pas ici de présenter une étude détaillée de ces effets, nous nous contenterons d'en rappeler les principales caractéristiques intervenant dans notre classification.

a. Dispositif expérimental

L'observation de l'effet "Rayleigh" stimulé requiert l'utilisation d'une onde pompe de fréquence ω et de vecteur d'onde \vec{k} , et faisant un angle θ (pouvant prendre des valeurs de 0 à 180°) avec une onde sonde de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$, et de vecteur d'onde \vec{k}_p (Fig. II.3.2-1). L'interférence de ces deux ondes conduit à un champ électrique dont l'intensité présente une composante modulée temporellement à la fréquence δ , et spatialement avec une période de $\lambda/2 \sin(\theta/2)$ (où λ est la longueur d'onde des lasers). Cette modulation d'intensité va alors donner lieu à une modulation de densité par les processus antagonistes d'électrostriction (accumulation des molécules dans les zones de forte intensité, voir §II.3.2.c ci-dessous) et d'absorption de lumière (provoquant un échauffement local du milieu aux endroits de plus forte intensité et, par dilatation thermique, une diminution de sa densité).

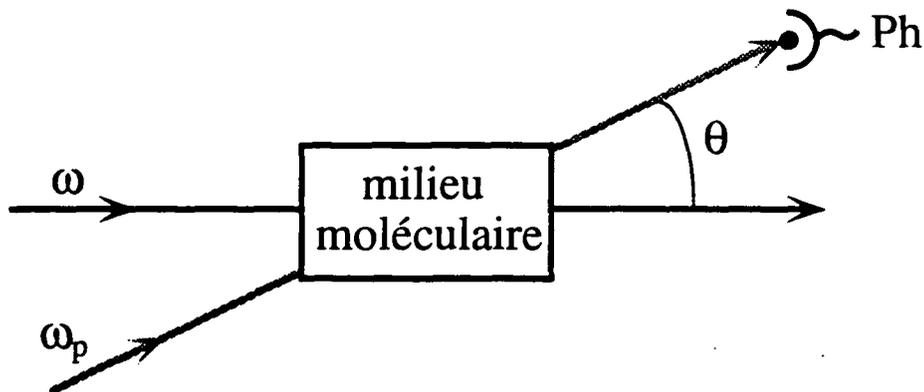


FIG. II.3.2-1 : Schéma expérimental pour l'observation de l'effet "Rayleigh" stimulé. Deux faisceaux pompe (ω) et sonde (ω_p) faisant entre eux un angle θ (0-180°) se propagent à travers un milieu moléculaire. A la sortie de la cellule, l'intensité du faisceau sonde est mesurée en fonction de ω_p au moyen d'une photodiode Ph.

b. Processus de relaxation

Nous nous intéressons ici au processus de relaxation des fluctuations de densité isobares du milieu. La contrainte que constitue l'équation d'état du fluide considéré impose que de telles fluctuations s'accompagnent nécessairement de variations de température dans le milieu, si bien que la relaxation va faire intervenir tout à la fois les processus de transport d'énergie, de matière, et de quantité de mouvement (équation de Navier-Stokes). On peut alors montrer que le temps de relaxation des fluctuations isobares de densité sous l'action de ces processus est égale à [Kai72]-[Boy92] :

$$\tau = \frac{\bar{\mu} C_p}{2\kappa(\bar{k} - \bar{k}_p)^2} = \frac{\bar{\mu} C_p}{8\kappa k^2 \sin^2(\theta/2)} \quad (\text{II.3.2-2})$$

où κ est la conductivité thermique du milieu. On reconnaît alors sur (II.3.2-2) l'expression du temps de relaxation de la modulation spatiale de densité de pas $\lambda/2 \sin(\theta/2)$, par un processus de *diffusion spatiale* de coefficient :

$$D_x = \frac{\kappa}{\bar{\mu} C_p} \quad (\text{II.3.2-3})$$

cette diffusion étant ici un peu particulière puisque procédant d'échanges de matière mais aussi d'énergie. L'ordre de grandeur typique du temps de relaxation τ pour un angle θ de 180° est de 10^{-8} s (cas des milieux de faible conductivité thermique), mais il peut devenir considérablement plus long dans le cas où pompe et sonde font entre elles un très petit angle.

c. Effet Rayleigh électrostrictif stimulé

L'électrostriction est un processus décrivant la tendance d'un système à devenir plus dense en présence d'un champ électrique. On peut l'interpréter d'un point de vue microscopique en considérant la force agissant sur une molécule individuelle en présence d'un champ électrique \vec{E} . La molécule acquiert en effet un moment dipolaire électrique $\vec{d} = \alpha \vec{E}$ (où α désigne la polarisabilité de la molécule), et stocke ainsi une énergie :

$$U = -\int_0^{\vec{E}} \vec{d} \cdot d\vec{E}' = -\alpha \int_0^{\vec{E}} \vec{E}' \cdot d\vec{E}' = -\frac{1}{2} \alpha \vec{E}^2$$

conduisant à une force de la forme :

$$\vec{F} = -\vec{\nabla} U = \frac{1}{2} \alpha \vec{\nabla} (\vec{E}^2) \quad (\text{II.3.2-4})$$

qui tend à accumuler les molécules dans les zones de plus grande intensité de champ électrique. Notons au passage que cette force est l'analogie, pour les molécules, des forces dipolaires qui jouent un rôle très important dans la physique du refroidissement d'atomes neutres par laser.

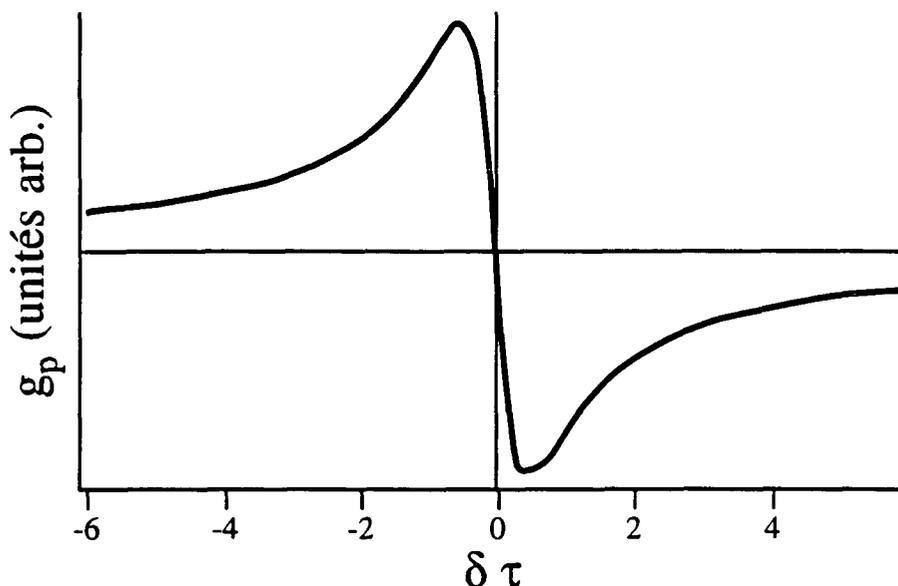


FIG. II.3.2-2 : Gain Rayleigh de la sonde g_p en fonction du paramètre sans dimension $\delta\tau$, en présence d'électrostriction. Le processus Rayleigh électrostrictif se manifeste sur le spectre de transmission sous la forme d'une résonance dispersive de largeur $1/\tau$. L'amplification de la sonde ($g_p > 0$) correspond aux fréquences Stokes.

La modulation spatio-temporelle d'intensité liée à l'interférence de la pompe et de la sonde va ainsi conduire à une variation spatio-temporelle de densité, éventuellement déphasée en raison du temps de réponse τ du milieu, et tendant à accumuler les molécules dans les zones de plus *forte* intensité. La diffraction de la pompe sur cette modulation de densité se manifeste alors sur le spectre de transmission de la sonde sous la forme d'une résonance "Rayleigh" d'allure dispersive, et présentant une partie amplificatrice en une partie absorptive (Fig. II.3.2-2).

d. Effet Rayleigh thermodiffusif stimulé

L'effet thermodiffusif stimulé ne se produit que dans les milieux absorbant la lumière. Dans ce cas, la modulation spatio-temporelle d'intensité liée à l'interférence de la pompe et de la sonde s'accompagne d'une variation modulée de la température sous l'effet de l'absorption de photons laser, et par suite du phénomène de dilatation thermique, d'une modulation spatio-temporelle de densité, éventuellement déphasée en raison du temps de réponse fini τ du milieu. On voit alors qu'au contraire du processus d'électrostriction, cet effet tend à accumuler les molécules dans les zones de plus *faible* intensité. La diffraction de la pompe sur cette modulation de densité

conduit également à une résonance “Rayleigh” d’allure dispersive sur le spectre de transmission de la sonde (Fig. II.3.2-3).

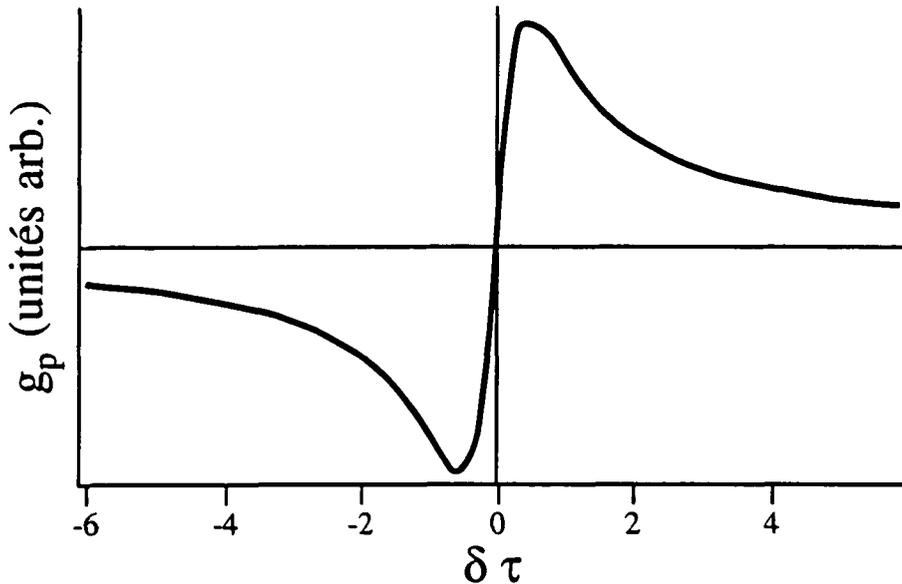


FIG. II.3.2-3 : Dépendance du gain de la sonde g_p en fonction du paramètre sans dimension $\delta\tau$, en présence d’absorption laser. Le processus Rayleigh thermodiffusif se manifeste sur le spectre de transmission sous la forme d’une résonance dispersive de largeur $1/\tau$. L’amplification de la sonde ($g_p > 0$) correspond aux fréquences anti-Stokes.

La comparaison des Figs II.3.2-2 et II.3.2-3 montre que la résonance Rayleigh thermodiffusive a un signe opposé à la résonance Rayleigh électrostrictive. Ceci est très naturel puisque nous avons vu que l’électrostriction et l’absorption ont des effets exactement opposés. En effet, pour une modulation d’intensité donnée, les variations locales de densité dues à ces deux processus ont des signes exactement opposés et engendrent naturellement des résonances de signe différent. Une autre caractéristique très importante de ces deux types de résonances est que dans un milieu absorbant la lumière, l’effet Rayleigh électrostrictif est presque toujours négligeable devant l’effet thermodiffusif, et la résonance “Rayleigh” présente alors toujours l’allure de la Fig. II.3.2-3. Plus précisément, on peut montrer que dans la très grande majorité des milieux moléculaires, la présence d’impuretés, même en faible concentration, contribue à rendre le mécanisme d’absorption très nettement dominant sur celui d’électrostriction, la tendance s’inversant uniquement dans le cas de milieux très purs où le coefficient d’absorption est inférieur à 10^{-3} cm^{-1} . Ceci rend donc l’observation de l’effet Rayleigh électrostrictif extrêmement difficile dans les milieux moléculaires. Nous verrons au chapitre IV qu’il est en revanche possible de l’observer dans les mélasses optiques d’atomes neutres.

Nous finissons en mentionnant que l'effet "Rayleigh" conduit généralement à des gains typiques d'un ordre de grandeur inférieurs aux gains Raman, et de deux ordres de grandeurs inférieurs aux gains Brillouin, correspondant à la diffusion sur une onde acoustique de densité. Les caractéristiques des deux effets "Rayleigh" sont résumées dans le Tableau II.3.2-1.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Fluide dense, $T \approx 300 \text{ }^\circ\text{C}$	Molécules, atomes	—
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
$\sin^2(\theta/2) \times 10 \text{ MHz}$	Diffusion spatiale par transport d'énergie et de matière	θ : angle entre pompe et sonde
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Modulation de densité <i>Par électrostriction</i> (effet Rayleigh électrostrictif) <i>Par absorption laser</i> (effet Rayleigh thermodiffusif)	θ : angle entre pompe et sonde	Diffraction de Bragg sur réseau de densité

Tableau II.3.2-1 : Caractéristiques de l'effet "Rayleigh" dans un fluide moléculaire.

4. Diffusion Rayleigh dans les vapeurs atomiques

Nous entamons à présent l'étude des résonances Rayleigh dans les milieux atomiques, que nous structurerons à l'aide de nos différents critères de classification énoncés au §II.2.3 (Tableau II.2.3-1). Suivant notre premier critère, la première distinction que nous effectuerons sera entre les vapeurs atomiques, de température typique 100° C imposée par un thermostat, objet du présent paragraphe, et les mélasses optiques, de température de l'ordre de quelques μK due à l'action de faisceaux lasers de refroidissement (et en cela fondamentalement différentes des vapeurs atomiques), objets des chapitres III et IV. Les vapeurs atomiques et les faisceaux lasers considérés ici auront en commun les propriétés suivantes :

- Faible densité atomique (absence de collision, milieu optiquement mince).
- Les deux faisceaux pompe et sonde sont colinéaires (ou font entre eux un angle très petit), et leur désaccord à résonance est très grand devant la largeur Doppler du milieu. Ceci reviendra à traiter un problème unidimensionnel avec des atomes immobiles.
- Aucune cause d'élargissement (de relaxation) autre que radiative. On négligera en particulier l'élargissement lié au temps fini d'interaction des atomes avec les ondes lasers.

Le second critère de notre classification, portant sur les caractéristiques des processus de relaxation intervenant dans le milieu, va alors nous amener à considérer deux types d'effets Rayleigh observés à ce jour dans les vapeurs atomiques. Le premier (§II.4.1) concerne le cas des atomes à deux niveaux, et est caractérisé par un taux de relaxation unique lié à la largeur naturelle Γ du niveau excité. La très grande simplicité de ce système nous conduira à exposer deux voies d'approche de l'effet Rayleigh stimulé, l'une dans le formalisme des modes propres de relaxation excités par la sonde (§II.4.1.a), et l'autre dans le cadre de la théorie de la diffusion, qui fera clairement apparaître la forme dispersive de la résonance Rayleigh comme résultant d'un phénomène d'interférence quantique entre diagrammes associés au processus d'absorption de la sonde (§II.4.1.b). Le second (§II.4.2) porte sur les systèmes d'atomes à plusieurs niveaux qui, dans la limite de faible saturation de la transition atomique, donnent lieu à un effet Rayleigh stimulé d'une nature différente. Nous verrons en effet que dans ce cas, le processus de relaxation est caractérisé par un taux $\Gamma' = \Gamma s_0/2$ beaucoup plus petit que Γ (le paramètre de saturation de la transition s_0 étant très petit devant 1), lié au phénomène de pompage optique entre les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental. Nous terminerons (§II.4.3) en revenant sur le cas des résonances Raman induites par le recul considérées au chapitre I. Nous montrerons qu'elles peuvent également s'interpréter en termes de processus Rayleigh stimulés, et nous mettrons en évidence l'aspect complémentaire des deux interprétations.

4.1. Effet Rayleigh stimulé des atomes à deux niveaux

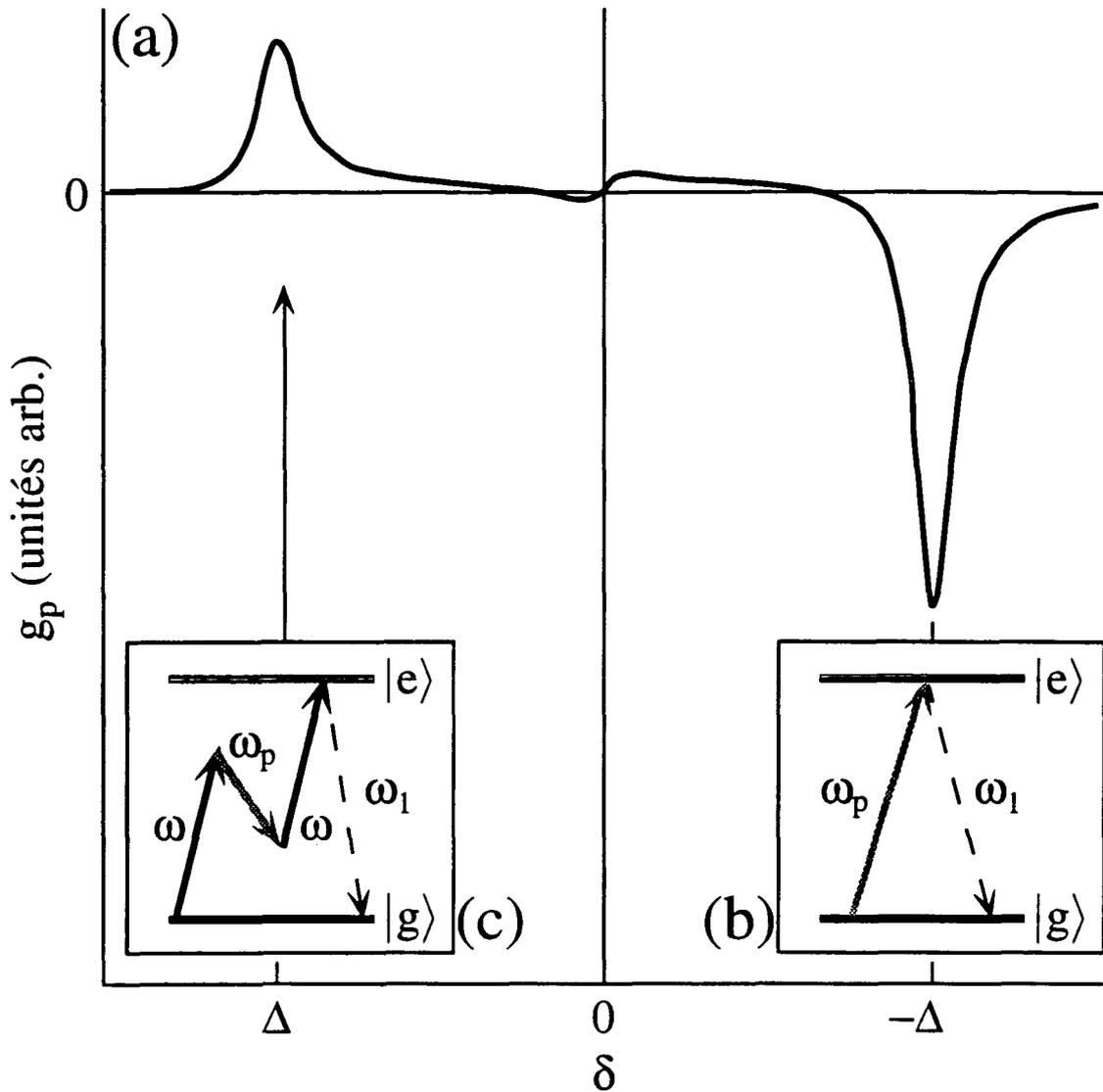


FIG. II.4.1-1 : (a) Dépendance du gain g_p d'une onde sonde de fréquence variable ω_p interagissant avec une vapeur d'atomes à deux niveaux $|g\rangle$ et $|e\rangle$ (fréquence atomique ω_A) pompés par une onde intense de fréquence ω , en fonction de la différence de fréquence $\delta = \omega_p - \omega$, et pour un désaccord à résonance négatif de l'onde pompe : $\Delta = \omega - \omega_A < 0$ (Ce spectre a été calculé par J. Zakrzewski, de l'université de Cracovie). (b) Processus de diffusion responsable de la raie en absorption de la Fig. II.4.1-1(a) ($g_p < 0$), centrée en $\delta = -\Delta$: absorption d'un photon sonde ω_p et émission spontanée d'un photon de fluorescence ω_1 . (c) Processus hyper-Raman à trois photons à l'origine de la raie en amplification de la Fig. II.4.1-1(a) ($g_p > 0$), centrée en $\delta = \Delta$: absorption d'un photon pompe ω , émission stimulée d'un photon sonde ω_p , absorption d'un deuxième photon pompe, et émission spontanée d'un photon de fluorescence ω_1 . Le spectre de la Fig. II.4.1-1(a) montre également l'existence d'une résonance Rayleigh stimulée de forme dispersive centrée en $\delta = 0$.

L'histoire de l'effet Rayleigh stimulé des atomes à deux niveaux est assez cocasse, puisque ce processus fut tout d'abord prédit théoriquement [Mol72], puis observé expérimentalement [Wu77], sans que les auteurs ne le mentionnent explicitement ! La raison semble en être que dans les deux cas, la mise en évidence simultanée du processus de gain de la sonde par processus hyper-Raman à trois photons occulta la présence, il est vrai discrète, d'une résonance supplémentaire sur le spectre de transmission de la sonde, et qui fut par la suite attribuée à un processus Rayleigh stimulé (Fig. II.4.1-1). Notre but est ici de proposer une double interprétation de cette résonance, tout d'abord en termes de modes dynamiques du système atome à deux niveaux-champ électromagnétique quantifié, décrit par la méthode de l'atome habillé, puis au moyen d'une approche de type théorie de la diffusion qui fera clairement ressortir la résonance Rayleigh comme un processus d'interférence entre différents diagrammes associés à l'absorption de l'onde sonde.

a. Approche modale par la méthode de l'atome habillé

Nous montrons ici comment il est possible d'interpréter la résonance Rayleigh stimulée des atomes à deux niveaux dans le point de vue modal présenté au §II.2.2, et qui nous permettra de caractériser le processus Rayleigh selon les critères de notre classification. Nous employons pour ce faire une approche de type atome habillé [Coh88c] en quantifiant uniquement le mode du champ pompe, et en décrivant le rôle de l'onde sonde par une modulation temporelle lente de l'amplitude de la pompe [Gry89].

Nous considérons donc un atome à deux niveaux $|g\rangle$ (niveau fondamental) et $|e\rangle$ (niveau excité) situé à l'origine des coordonnées [Rq.II-8], interagissant avec un champ pompe d'amplitude E_0 et de fréquence ω :

$$E_0(t) = E_0 e^{-i\omega t} + \text{c. c.} \quad (\text{II.4.1-1})$$

et un champ sonde d'amplitude $\varepsilon E_0 \ll E_0$ et de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$:

[Mol72] B. R. Mollow, Phys. Rev. A **5**, 2217 (1972).

[Wu77] F. Y. Wu, S. Ezekiel, M. Ducloy et B. R. Mollow, Phys. Rev. Lett. **38**, 1077 (1977) ; la résonance Rayleigh stimulée est visible sur la Fig. 4(a), ainsi que sur les courbes théoriques de la Fig. 4(b).

[Coh88c] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, InterEdition/Édition du CNRS, chapitre VI (1988).

[Gry89] G. Grynberg et P. Berman, Phys. Rev. A **39**, 4016 (1989).

[Rq.II-8] Il est en principe nécessaire de considérer le cas général d'un atome situé en un point quelconque de l'espace, et d'effectuer à l'issue des calculs une moyenne sur tout l'espace de la quantité étudiée (ici l'intensité de l'onde sonde transmise à travers la vapeur atomique). Toutefois, dans le cas où les ondes pompe et sonde se propagent dans la même direction, on peut aisément vérifier que la quantité étudiée est indépendante de la position de l'atome, si bien qu'il est possible de parvenir au résultat exact en considérant uniquement le cas d'un atome situé à l'origine des coordonnées.

$$E_p(t) = \varepsilon E_0 e^{-i(\omega+\delta)t} + \text{c.c.} \quad (\text{II.4.1-2})$$

Le champ total s'écrit alors :

$$E(t) = \left[E_0 (1 + \varepsilon e^{-i\delta t}) \right] e^{-i\omega t} + \text{c.c.} \quad (\text{II.4.1-3})$$

Cette formule montre qu'il est possible de décrire l'influence de la sonde par une modulation temporelle de l'amplitude du champ pompe à la fréquence δ . Ceci suggère d'étudier tout d'abord l'influence du seul champ pompe d'amplitude constante et de fréquence ω sur le système atomique, puis d'en déduire, moyennant quelques hypothèses sur la fréquence δ , l'influence de la sonde sur le milieu en faisant varier lentement l'amplitude du champ pompe.

(i) Système en présence d'une onde pompe d'amplitude constante

En quantifiant le champ pompe, le Hamiltonien total du système atome-champ s'écrit :

$$H = \hbar\omega_A |e\rangle\langle e| + \hbar\omega \left(a^\dagger a + \frac{1}{2} \right) + \frac{\hbar\Omega_0}{2\sqrt{\langle N \rangle}} \left[|e\rangle\langle g| a + |g\rangle\langle e| a^\dagger \right] \quad (\text{II.4.1-4})$$

où ω_A est la fréquence de la transition atomique, $\Omega_0 = -2DE_0/\hbar$ est la fréquence de Rabi résonnante qui caractérise le couplage entre le dipôle atomique D et le champ pompe, et $\langle N \rangle \gg 1$ le nombre moyen de photons contenu dans le mode de l'onde pompe. Les états propres de H sont donnés par :

$$\begin{aligned} |1(N)\rangle &= \sin\theta |g, N+1\rangle + \cos\theta |e, N\rangle \\ |2(N)\rangle &= \cos\theta |g, N+1\rangle - \sin\theta |e, N\rangle \end{aligned} \quad (\text{II.4.1-5})$$

où $|g, N+1\rangle$ et $|e, N\rangle$ sont les états propres du système en l'absence de couplage atome-champ, d'énergie $(N+1)\hbar\omega$ et $(N\hbar\omega + \hbar\omega_A)$. L'angle θ , compris entre 0 et $\pi/2$ (exclu), est défini par la relation :

$$\cotan 2\theta = -\frac{\Delta}{\Omega_0} \quad (\text{II.4.1-6})$$

où $\Delta = \omega - \omega_A$ est le désaccord des lasers par rapport à la résonance atomique. Rappelons également que $|1(N)\rangle$ désigne toujours l'état de plus haute énergie, supérieure d'une quantité $\hbar\Omega = \hbar\sqrt{\Omega_0^2 + \Delta^2}$ à celle du niveau $|2(N)\rangle$.

Le désaccord à résonance étant choisi grand devant la largeur Doppler du milieu, on se trouve toujours dans la limite séculaire $|\Delta| \gg \Gamma$ où la différence d'énergie entre les niveaux est très grande devant leur largeur. Il est alors possible de négliger toute cohérence entre niveaux, et de décrire entièrement la dynamique du milieu au moyen d'équations de taux portant sur les populations $\pi_1(N)$ et $\pi_2(N)$ des états $|1(N)\rangle$ et $|2(N)\rangle$:

$$\dot{\pi}_i(N) = - \sum_{j=1,2} \Gamma_{i \rightarrow j} \pi_i(N) + \sum_{k=1,2} \Gamma_{k \rightarrow i} \pi_k(N+1) \quad (\text{II.4.1-7})$$

avec :

$$\begin{cases} \Gamma_{1 \rightarrow 1} = \Gamma_{2 \rightarrow 2} = \Gamma \cos^2 \theta \sin^2 \theta \\ \Gamma_{1 \rightarrow 2} = \Gamma \cos^4 \theta \\ \Gamma_{2 \rightarrow 1} = \Gamma \sin^4 \theta \end{cases} \quad (\text{II.4.1-8})$$

décrivant le départ (premier terme) et l'alimentation (second terme) des niveaux habillés par émission spontanée. On définit alors les populations réduites π_1 et π_2 par :

$$\pi_i = \sum_N \pi_i(N) \quad (\text{II.4.1-9})$$

qui, portées dans (II.4.1-7), conduisent à une équation d'évolution d'une quantité statistique ρ définie par les deux variables réduites π_1 et π_2 . On se ramène ainsi à une situation analogue à celle décrite au §II.2.2, ce qui va nous permettre de déterminer sans difficulté les caractéristiques de la résonance Rayleigh stimulée.

L'opérateur dynamique issu de (II.4.2-7) étant ici de dimension 2, sa diagonalisation est immédiate et conduit d'une part à l'état stationnaire ρ_{st} du système défini par :

$$\begin{cases} \pi_{1,st} = \frac{\sin^4 \theta}{\cos^4 \theta + \sin^4 \theta} \\ \pi_{2,st} = \frac{\cos^4 \theta}{\cos^4 \theta + \sin^4 \theta} \end{cases} \quad (\text{II.4.1-10})$$

qui correspond à l'état d'équilibre d'un système de température effective T_{eff} définie par :

$$k_B T_{eff} = \frac{\hbar \Omega / 4}{\ln[\Omega_0 / (\Omega + \Delta)]} \quad (\text{II.4.1-11})$$

et d'autre part au seul mode dynamique décrivant la relaxation de la différence de population $\pi_1 - \pi_2$, de taux :

$$\gamma = \Gamma_{1 \rightarrow 2} + \Gamma_{2 \rightarrow 1} = \Gamma (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta) \quad (\text{II.4.1-12})$$

qui pourra seul être excité par la sonde.

(ii) Système en présence de la sonde

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'influence de la sonde sur le milieu est équivalente à une modulation temporelle à la fréquence δ de l'amplitude du champ pompe. La tentation est alors grande de remplacer dans les expressions ci-dessus l'amplitude constante E_0 par l'amplitude modulée tenant compte de la présence de l'onde sonde. Il convient toutefois à ce propos de faire deux remarques.

La première concerne la capacité du système à suivre adiabatiquement la modulation temporelle imposée par la sonde. On sait que la condition à satisfaire pour que le suivi adiabatique ait lieu est que la fréquence de la modulation (ici δ) soit suffisamment faible devant la plus petite fréquence de Bohr du système (ici Ω). Comme nous nous attendons d'ores et déjà à ce que la résonance Rayleigh apparaisse pour des valeurs de δ de l'ordre de $\gamma \approx \Gamma$ (la sonde ne peut exciter que le seul mode de trace nulle, de taux de relaxation γ), et que l'on se trouve dans le cadre de l'approximation séculaire, cette condition sera toujours largement vérifiée pour le cas de la structure Rayleigh (ce ne serait en revanche pas vrai pour les structures Raman). Ceci a immédiatement la conséquence importante que la sonde n'affectera le milieu que sous la forme d'une modulation temporelle des *populations* π_1 et π_2 , ou de façon équivalente de la température effective T_{eff} , mais qu'en aucun cas elle ne conduira à la création de cohérences entre les états $|1(N)\rangle$ et $|2(N)\rangle$. Cette propriété, non évidente *a priori*, est très importante à vérifier, car dans le cas contraire, il devient nécessaire de prendre également en considération les modes dynamiques de relaxation des cohérences entre les différents niveaux, bien que ces cohérences soient nulles dans l'état stationnaire. Le suivi adiabatique par le système de l'excitation de la sonde apporte ainsi une très grande simplification du problème.

La seconde remarque est que le simple remplacement de l'amplitude de la pompe par une amplitude modulée revient à considérer que le milieu suit instantanément la modulation temporelle imposée par la sonde, ce qui n'est pas conforme à la réalité puisque les populations évoluent avec une constante de temps $1/\gamma$. Il suffit en fait de regarder la structure de l'équation (II.2.2-8) décrivant la modification de l'état du système sous l'action de la sonde, et de sa solution (II.2.2-10), pour se convaincre que la dynamique du milieu fait apparaître, dans le cas présent où n'intervient qu'un seul mode de relaxation, un facteur $\gamma / (\gamma - i\delta)$ décrivant le retard avec lequel le système répond à la sollicitation de l'onde sonde. On constate en particulier que ce facteur tend vers 1 lorsque la fréquence de la modulation tend vers 0 (l'amplitude du champ total est alors constante). Il est alors immédiat de conclure que l'effet de la sonde sur le milieu consiste en une modulation temporelle de la variable statistique ρ :

$$\rho_{st} \rightarrow \rho_{st} + \varepsilon E_0 \left(e^{-i\delta t} \frac{\gamma \partial_{E_0} \rho_{st}}{\gamma - i\delta} + \text{c. c.} \right) \quad (\text{II.4.1-13})$$

En utilisant les expressions (II.4.1-6), (II.4.1-10) et (II.4.1-11), il est aisé de caractériser $\partial_{E_0} \rho_{st}$. On trouve ainsi que π_2 augmente aux dépens de π_1 dans le cas d'un désaccord à résonance positif, tandis que π_1 augmente aux dépens de π_2 pour un désaccord à résonance négatif ; ou de façon équivalente, que la température effective T_{eff} augmente, quel que soit le désaccord. Ceci est dû au fait qu'en modifiant l'angle de mélange θ entre les états $|g, N+1\rangle$ et $|e, N\rangle$ de l'atome habillé, la sonde induit une modification des taux d'alimentation $\Gamma_{i \rightarrow j}$ des états $|1(N)\rangle$ et $|2(N)\rangle$ par émission spontanée, et par suite de leurs populations respectives.

(iii) Allure du spectre de transmission de la sonde

Il ne reste plus, pour caractériser complètement la résonance Rayleigh, qu'à montrer comment la modulation temporelle de température effective (ou, de manière équivalente, de la différence de population entre les états $|1(N)\rangle$ et $|2(N)\rangle$), conduit à une polarisation du milieu rayonnant un champ capable d'interférer avec l'onde sonde. Il suffit pour cela de calculer la valeur moyenne du dipôle électrique atomique en présence de la sonde :

$$\langle \mathbf{D} \rangle = \pi_1 \langle 1 | \mathbf{D} | 1 \rangle + \pi_2 \langle 2 | \mathbf{D} | 2 \rangle = D \sin \theta \cos \theta (\pi_1 - \pi_2) \quad (\text{II.4.1-14})$$

qui montre que la polarisation du milieu est proportionnelle à la différence de population des niveaux $|1(N)\rangle$ et $|2(N)\rangle$, quantité qui est précisément modulée temporellement par la sonde. Ceci est dû au fait que les populations des niveaux habillés contiennent des termes relatifs à des cohérences entre les niveaux $|g, N+1\rangle$ et $|e, N\rangle$, équivalentes à un dipôle électrique. En utilisant (II.4.1-13) et (II.4.1-14), et par analogie avec le résultat du §II.2.1, on s'attend à ce que la densité de puissance \mathcal{P} transférée du milieu atomique vers l'onde sonde, normalisée à ε^2 , soit de la forme :

$$\mathcal{P} \propto \sin 2\theta \frac{\gamma \delta}{\delta^2 + \gamma^2} \Omega_0 E_0 \partial_{E_0} (\pi_{1, \text{st}} - \pi_{2, \text{st}}) \quad (\text{II.4.1-15})$$

(l'absorption linéaire de la sonde par le milieu n'a pas été prise en compte). L'Eq. (II.4.1-15) montre l'existence d'une résonance Rayleigh stimulée d'allure dispersive, et de demi-largeur $\gamma \approx \Gamma$. De plus, compte-tenu de la seconde remarque du §II.4.1.a.(ii), on s'attend à un renversement de cette structure lorsque le signe du désaccord à résonance change, de telle manière à ce qu'elle ait l'allure de la Fig. II.3.2-2 dans le cas d'un désaccord positif (conformément à l'observation expérimentale de [Wu77]), et celle de la Fig. II.3.2-3 pour un désaccord négatif (voir Fig. II.4.1-1(a)). Il est également intéressant de déduire la dépendance de (II.4.1-15) en

fonction des paramètres du laser de pompe. En effectuant un développement des différentes quantités dans la limite $|\sin \theta| \ll 1$ (limite de faible saturation de la transition atomique, largement vérifiée pour les grands désaccords considérés ici), on trouve sans difficulté :

$$P \propto -\frac{\Omega_0^6}{\Delta^5} \frac{\Gamma \delta}{\delta^2 + \Gamma^2} \quad (\text{II.4.1-16})$$

et la résonance Rayleigh est alors exactement de demi-largeur égale à Γ . On constate sur cette expression que l'effet Rayleigh des atomes à deux niveaux est un effet d'ordre élevé en le petit paramètre θ .

(iv) Résumé des résultats

Les principales caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé des atomes à 2 niveaux sont résumées dans le tableau II.4,1-1.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Gaz dilué, $T \approx 400^\circ\text{K}$	Atomes à deux niveaux	—
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
Largeur du niveau excité $\Gamma \approx 10 \text{ MHz}$	Emission spontanée	—
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Modification de l'angle de mélange entre états habillés	—	—

Tableau II.4.1-1 : Caractéristiques de l'effet Rayleigh des atomes à deux niveaux.

b. Interprétation élémentaire de la résonance Rayleigh des atomes à deux niveaux par la théorie de la diffusion [Gry93a]

La très grande simplicité des atomes à deux niveaux, tant dynamique (un seul mode propre de relaxation) que structurelle (deux niveaux seulement intervenant dans l'interaction avec le rayonnement), permet un calcul élémentaire de la résonance Rayleigh par la théorie de la diffusion. Cette approche, en mettant en évidence les processus élémentaires impliqués, a ainsi récemment permis de donner une interprétation physique claire de la résonance Rayleigh en termes d'interférence quantique entre diagrammes liés à l'absorption de l'onde sonde. Nous nous contenterons ici de rappeler brièvement les résultats essentiels de cette approche, en renvoyant pour tout détail à la Réf. [Gry93a]. La résonance Rayleigh résultant d'une compétition entre processus d'amplification et d'absorption de l'onde sonde, il convient de distinguer successivement ces deux phénomènes. Les calculs sont ici effectués par une méthode perturbative dans la limite $\Omega_0 \ll |\Delta|$ ($|\sin\theta| \ll 1$ avec les notations du paragraphe précédent).

(i) Processus d'absorption de l'onde sonde

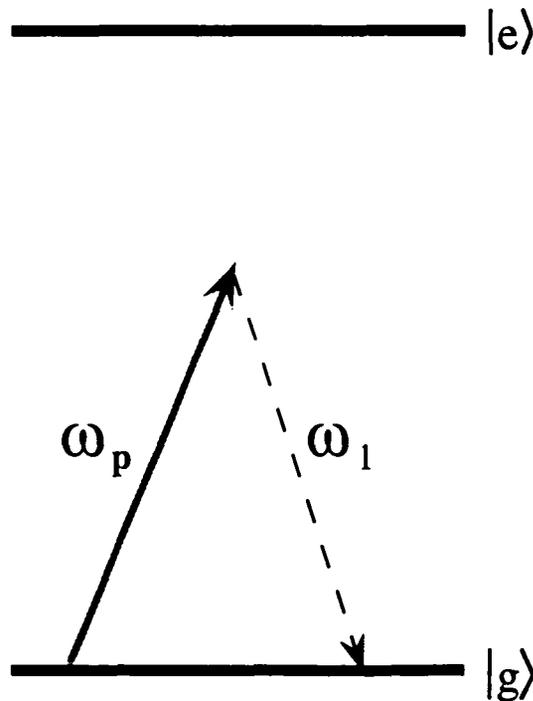


FIG. II.4.1-2 : Diagramme non résonnant faisant intervenir l'émission d'un seul photon de fluorescence ω_l , et contribuant à l'absorption de la sonde.

On peut montrer que la contribution principale à l'absorption de la sonde provient de deux processus. D'une part la diffusion Rayleigh élastique schématisée sur la Fig. II.4.1-2, et associée à l'émission d'un seul photon de fluorescence ω_1 de fréquence proche de ω_A . Ce processus non résonnant est caractérisé par la section efficace d'absorption linéaire dans le milieu :

$$\sigma_{\text{abs}}^{(1)} = \frac{3}{2\pi} \lambda_A^2 \frac{\Gamma^2/4}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (\text{II.4.1-17})$$

où λ_A est la longueur d'onde associée à la fréquence atomique ω_A . Et d'autre part de deux diagrammes faisant chacun intervenir l'émission de deux photons de fluorescence de fréquences ω_1 et ω_2 proches respectivement de $2\omega - \omega_A$ et de ω_A . Le premier de ces diagrammes est représenté sur la Fig. II.4.1-3 et correspond à un processus non résonnant, tandis que le second, représenté sur la Fig. II.4.1-4 correspond à un processus quasi-résonnant [Rq.II-9].

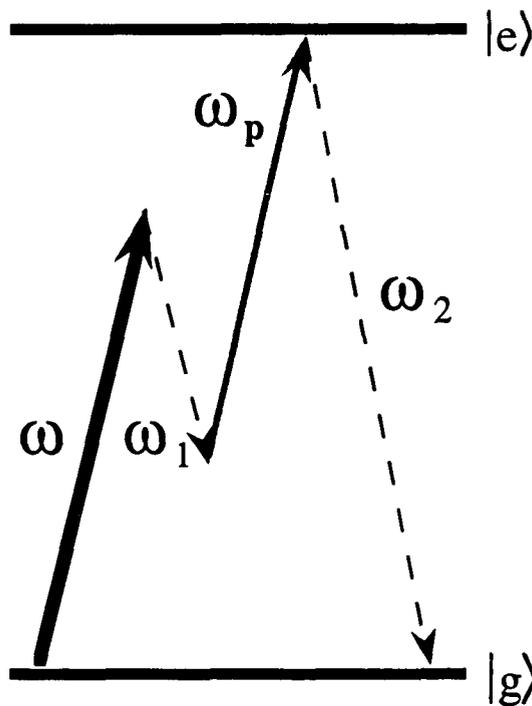


FIG II.4.1-3 : Diagramme non résonnant faisant intervenir l'émission de deux photons de fluorescence ω_1 et ω_2 , et contribuant à l'absorption de la sonde.

Il apparaît alors clairement que les diagrammes des Figs II.4.1-3 et II.4.1-4 ont mêmes états initial et final aussi bien pour l'atome que pour le champ, et qu'ils peuvent donc interférer. On montre en effet que la section efficace d'absorption d'un photon sonde associée à ces diagrammes est de la forme :

[Rq.II-9] L'appellation non résonnant et quasi-résonnant se justifie plus clairement par la méthode de l'atome habillé. Voir pour plus de détails [Gry93a].

$$\sigma_{\text{abs}}^{(2)} = \sigma_{\text{abs}}^{(\text{n.r.})} + \sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})} + \sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})} \quad (\text{II.4.1-18})$$

où le premier terme $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{n.r.})}$ est associé à la contribution du diagramme non résonnant schématisé sur la Fig. II.4.1-3, $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})}$ à celle du diagramme résonnant de la Fig. II.4.1-4, tandis que $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})}$ correspond au terme d'interférence entre les deux processus de diffusion.

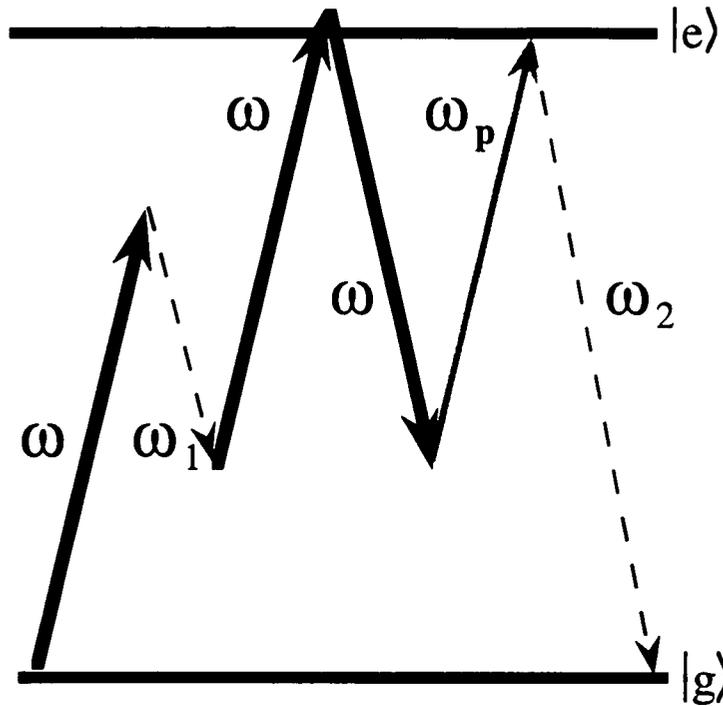


FIG II.4.1-4 : Diagramme quasi-résonnant faisant intervenir l'émission de deux photons de fluorescence ω_1 et ω_2 , et contribuant à l'absorption de la sonde.

Ces différentes contributions sont respectivement égales à :

$$\sigma_{\text{abs}}^{(\text{n.r.})} = \frac{3}{2\pi} \lambda_A^2 \left(\frac{\Omega_0}{2\Delta} \right)^2 \left(\frac{\Gamma}{\Delta} \right)^2 \quad (\text{II.4.1-19.a})$$

$$\sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})} = \frac{3}{\pi} \lambda_A^2 \left(\frac{\Omega_0}{2\Delta} \right)^6 \frac{\Gamma^2}{\delta^2 + \Gamma^2} \quad (\text{II.4.1-19.b})$$

$$\sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})} = \frac{3}{\pi} \lambda_A^2 \left(\frac{\Omega_0}{2\Delta} \right)^4 \frac{\Gamma^2}{\Delta} \frac{\delta}{\delta^2 + \Gamma^2} \quad (\text{II.4.1-19.c})$$

où $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})}$ présente une forme dispersive analogue à celle trouvée au paragraphe précédent pour la résonance Rayleigh stimulée. Il est intéressant de comparer ces différentes expressions à la section efficace d'absorption $\sigma_{\text{abs}}^{(1)}$ associée à l'émission d'un seul photon de fluorescence. Pour $\delta \approx \Gamma$, on trouve :

$$\frac{\sigma_{\text{abs}}^{(\text{n.r.})}}{\sigma_{\text{abs}}^{(1)}} \approx \left(\frac{\Omega_0}{\Delta} \right)^2 \quad (\text{II.4.1-20.a})$$

$$\frac{\sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})}}{\sigma_{\text{abs}}^{(1)}} \approx \left(\frac{\Omega_0^2}{\Delta\Gamma} \right)^2 \left(\frac{\Omega_0}{\Delta} \right)^2 \quad (\text{II.4.1-20.b})$$

$$\frac{\sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})}}{\sigma_{\text{abs}}^{(1)}} \approx \left(\frac{\Omega_0^2}{\Delta\Gamma} \right) \left(\frac{\Omega_0}{\Delta} \right)^2 \quad (\text{II.4.1-20.c})$$

Ainsi, s'il est clair que dans la limite perturbative ($\Omega_0 \ll |\Delta|$) $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{n.r.})}$ est bien plus petit que $\sigma_{\text{abs}}^{(1)}$, la grandeur relative de $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})}$, $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})}$ et $\sigma_{\text{abs}}^{(1)}$ varie en fonction de la valeur des paramètres du laser pompe, car Ω_0^2 peut être éventuellement plus grand que $|\Delta\Gamma|$. La raison pour laquelle un processus d'absorption impliquant l'émission de *deux* photons de fluorescence peut devenir comparable, voire supérieur, à un processus impliquant l'émission d'*un seul* photon, est que le premier processus est associé à un diagramme *résonnant*, tandis que le second l'est à un diagramme *non résonnant*.

Pour résumer, la section efficace d'absorption d'un photon sonde est donnée par :

$$\sigma_{\text{abs}} \approx \sigma_{\text{abs}}^{(1)} + \sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})} + \sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})} \quad (\text{II.4.1-21})$$

et est donc égale à la somme du terme d'absorption linéaire $\sigma_{\text{abs}}^{(1)}$, et des sections efficaces $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})}$ et $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})}$ correspondant à des processus impliquant la présence de l'onde pompe, et ayant un comportement résonnant autour de $\delta = 0$.

(ii) Processus d'amplification de l'onde sonde

On peut montrer que le seul processus significatif d'amplification de l'onde sonde correspond au diagramme quasi-résonnant schématisé sur la Fig. II.4.1-5, associé à l'émission de deux photons de fluorescence. Ce diagramme est très similaire à celui de la Fig. II.4.1-4, et il n'est donc pas surprenant que la section efficace d'amplification σ_{amp} qui lui est associée soit *identique* à la section efficace d'absorption $\sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})}$:

$$\sigma_{\text{amp}} = \sigma_{\text{abs}}^{(\text{r.})} \quad (\text{II.4.1-22})$$

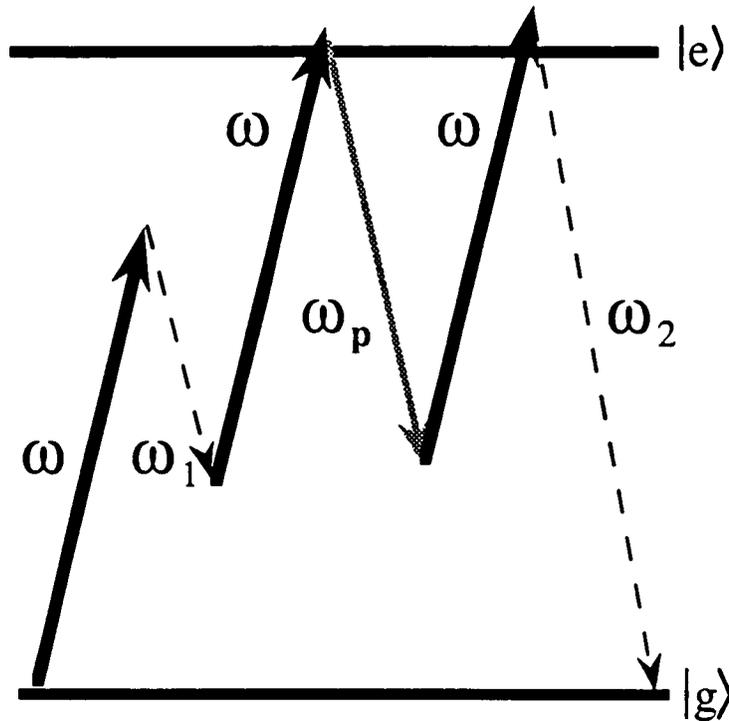


FIG. II.4.1-5 : Diagramme quasi-résonnant faisant intervenir l'émission de deux photons de fluorescence ω_1 et ω_2 , et contribuant à l'amplification de la sonde.

(iii) Compétition entre absorption et amplification

La section efficace totale d'absorption de photons sonde σ résulte de la compétition entre les différents processus discutés précédemment, et vaut donc :

$$\sigma = \sigma_{\text{abs}} - \sigma_{\text{amp}} \approx \sigma_{\text{abs}}^{(1)} + \sigma_{\text{abs}}^{(\text{int})} \quad (\text{II.4.1-23})$$

En utilisant (II.4.1-17) et (II.4.1-19.c), on arrive à l'expression :

$$\sigma \approx \frac{3}{8\pi} \lambda_A^2 \left(\frac{\Gamma}{\Delta} \right)^2 \left[1 + \frac{\Omega_0^4}{2\Delta^3} \frac{\delta}{\delta^2 + \Gamma^2} \right] \quad (\text{II.4.1-24})$$

qui peut prendre, pour certaines caractéristiques (intensité, désaccord à résonance) de l'onde pompe, des valeurs négatives correspondant à un phénomène d'amplification de l'onde sonde.

Afin de faire le lien avec l'approche modale, nous déduisons à partir de (II.4.1-24) l'expression de la densité de puissance transférée du milieu atomique vers la sonde. On trouve alors, sans prendre en considération le terme d'absorption linéaire, et après normalisation à ϵ^2 :

$$P \propto -\frac{\Omega_0^6}{\Delta^5} \frac{\delta}{\delta^2 + \Gamma^2} \quad (\text{II.4.1-25})$$

qui n'est autre que le résultat (II.4.1-16) établi au paragraphe précédent [Rq.II-10]. Nous sommes toutefois ici en mesure de donner une interprétation physique claire de la résonance Rayleigh. L'absorption et le gain associés aux processus représentés sur les Figs II.4.1-4 et II.4.1-5 se compensent exactement. Mais cet équilibre est en fait rompu par le processus d'interférence intervenant entre les contributions des diagrammes des Figs II.4.1-3 (par ailleurs négligeable) et II.4.1-4. C'est ce terme d'interférence, présentant une résonance centrale de forme dispersive, qui est à l'origine de l'effet Rayleigh stimulé des atomes à deux niveaux.

4.2. Cas d'un atome à plusieurs niveaux

Nous nous intéressons dans ce paragraphe au cas des transitions atomiques fermées entre un niveau fondamental $|g\rangle$ de moment cinétique $J_g > 0$, et un niveau excité $|e\rangle$ de moment cinétique J_e , comportant chacun un ensemble de sous-niveaux Zeeman dégénérés $|g, \mu\rangle$ et $|e, m\rangle$. Les intensité et désaccord du laser pompe sont choisis de manière à ne pas saturer la transition atomique (paramètre de saturation de la transition $s_0 \ll 1$). Dans ces conditions, il est possible, après élimination adiabatique des cohérences optiques et du niveau excité, de décrire entièrement la dynamique du système en termes de la restriction σ de la matrice densité à l'état fondamental (voir §R.3.1). L'équation d'évolution obtenue pour σ , qui n'est autre que l'équation du pompage optique, fait alors apparaître un phénomène de relaxation d'un type différent de celui étudié dans le cas des atomes à deux niveaux, et correspondant à des cycles d'absorption d'un photon pompe suivie d'un processus d'émission stimulée, au cours desquels l'atome change de sous-niveau Zeeman (pompage optique). Ces processus de départ sont caractérisés par le taux Γ' , égal à :

$$\Gamma' = \Gamma s_0 / 2 \quad (\text{II.4.2-1})$$

significativement plus faible que la largeur Γ du niveau excité. Le phénomène de pompage optique est en particulier responsable d'une modification des populations des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental, ainsi que d'un élargissement de ces sous-niveaux de l'ordre de $\hbar\Gamma'$. On peut donc s'attendre à ce que le processus de relaxation par pompage optique donne lieu à des processus Rayleigh stimulés d'un type nouveau. Cet effet a été récemment observé

[Rq.II-10] Nous n'avons décrit ici que le processus de diffusion Rayleigh stimulée en présence de relaxation purement radiative. Il est en fait bien connu que ce processus peut croître notablement en présence de relaxation collisionnelle (D. Grand-Clément, G. Grynberg et M. Pinard, Phys. Rev. Lett. **59**, 40 (1987)). Dans ce cas, le transfert de puissance des atomes vers la sonde apparaît à un ordre plus faible en champ pompe, et est proportionnel à Ω_0^4 .

expérimentalement et expliqué théoriquement dans le cas d'une vapeur de sodium [Gry90]-[Val92].

Afin de mettre en évidence et de caractériser ces résonances Rayleigh, nous commencerons par l'étude détaillée du cas simple d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ interagissant avec deux faisceaux pompe et sonde de polarisations linéaires orthogonales, qui mettra en évidence l'existence d'une résonance Rayleigh de largeur $\approx \Gamma'$ sur le spectre de transmission de la sonde (§II.4.2.a). Nous envisagerons alors succinctement le cas des autres transitions atomiques et des autres choix de polarisation des ondes pompe et sonde, en indiquant les processus physiques nouveaux intervenant dans les résonances Rayleigh stimulées.

a. Cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$

Nous considérons à nouveau le dispositif expérimental de la Fig. II.3.1-2, mais nous supposons à présent que le milieu moléculaire est remplacé par une vapeur d'atomes interagissant avec des faisceaux quasi-résonnants pour une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ (Fig. II.4.2-1), et nous étudions le spectre de transmission de la sonde par l'approche modale développée au §II.2.2. Nous considérons un atome situé à l'origine des coordonnées spatiales [Rq.II-11], qui interagit avec un champ pompe d'amplitude E_0 , de fréquence ω , et polarisé linéairement selon x :

$$\vec{E}_0(t) = E_0 \vec{e}_x e^{-i\omega t} + c.c. \quad (\text{II.4.2-2})$$

et un champ sonde d'amplitude $\varepsilon E_0 \ll E_0$, de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$, et polarisé linéairement selon y qui, à une phase arbitraire près, est de la forme :

$$\vec{E}_p(t) = -i\varepsilon E_0 \vec{e}_y e^{-i(\omega+\delta)t} + c.c. \quad (\text{II.4.2-3})$$

Le champ total se décompose alors, en utilisant la base $\vec{e}_{\pm 1} = \mp(\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y)/\sqrt{2}$ des polarisations circulaires σ^+ (\vec{e}_{+1}) et σ^- (\vec{e}_{-1}), sous la forme :

$$\vec{E}(t) = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \left[(1 + \varepsilon e^{-i\delta t}) \vec{e}_{-1} - (1 - \varepsilon e^{-i\delta t}) \vec{e}_{+1} \right] e^{-i\omega t} + c.c. \quad (\text{II.4.2-4})$$

[Gry90] G. Grynberg, M. Vallet, et M. Pinard, Phys. Rev. Lett. **65**, 701 (1990).

[Val92] M. Vallet, M. Pinard, et G. Grynberg, Opt. Comm. **87**, 340 (1992).

[Rq.II-11] Il est en principe nécessaire de considérer le cas général d'un atome situé en un point quelconque de l'espace, et d'effectuer à l'issue des calculs une moyenne sur tout l'espace de la quantité étudiée (ici l'intensité de l'onde sonde transmise à travers la vapeur atomique). Toutefois, dans le cas où les ondes pompe et sonde se propagent dans la même direction, on peut aisément vérifier que la quantité étudiée est indépendante de la position de l'atome, si bien qu'il est possible de parvenir au résultat exact en considérant uniquement le cas d'un atome situé à l'origine des coordonnées.

ce qui permet d'interpréter l'influence de la sonde comme une modulation temporelle à la fréquence δ de l'amplitude des composantes σ^+ et σ^- du champ pompe. Plus précisément, la sonde a pour effet de briser l'équilibre entre les composantes σ^+ et σ^- de la pompe, l'intensité totale du champ restant constante (au premier ordre en ϵ). Afin de pouvoir suivre une démarche analogue à celle du §II.4.1.a, nous allons considérer la situation plus générale où l'atome interagit avec deux champs de même fréquence ω , et de même vecteur d'onde, mais ayant des polarisations *circulaires* orthogonales et des amplitudes constantes *différentes*.

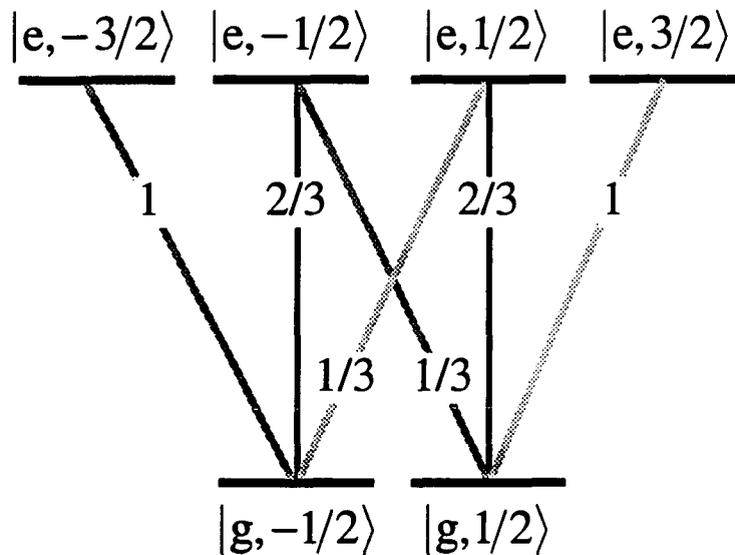


FIG. II.4.2-1 : Transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, où l'on a indiqué les carrés des coefficients de Clebsch-Gordan associés aux différentes transitions entre sous-niveaux Zeeman.

Dégageons tout d'abord quelques propriétés générales de la situation particulièrement simple que constitue le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. La dynamique du système étant ramenée dans l'état fondamental, quatre quantités (réelles) au plus suffisent à caractériser entièrement l'état de l'atome : les deux populations π_{\pm} des sous-niveaux $|g, \pm 1/2\rangle$, et les parties imaginaire et réelle de la cohérence Zeeman entre ces sous-niveaux. En réalité, du fait du choix de polarisation des champs pompe et sonde, aucune cohérence Zeeman ne peut apparaître dans le système, si bien que l'on se retrouve dans la situation d'un système dynamique de dimension 2 ayant pour modes propres d'une part un état stationnaire, et d'autre part un mode dynamique de relaxation de taux γ_0 pour la différence de population $\pi_- - \pi_+$ (γ_0 correspond au taux de pompage optique entre les deux sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental). Ce mode de relaxation caractérise l'évolution vers l'état stationnaire de l'orientation du milieu $\langle J_z \rangle = \hbar(\pi_+ - \pi_-)/2$. La valeur de γ_0 peut se déduire aisément de l'équation du pompage optique. On peut l'obtenir ici en multipliant Γ' par les carrés des coefficients de Clebsch-Gordan intervenant dans la transition entre

les deux sous-niveaux Zeeman du fondamental (1/3 pour l'absorption, 2/3 pour l'émission spontanée). On trouve ainsi :

$$\gamma_0 = \frac{2}{9} \Gamma' \quad (\text{II.4.2-5})$$

Enfin, remarquons que la somme des populations $\pi_- + \pi_+$ étant contrainte à prendre la valeur 1, le système se trouve être entièrement caractérisé par la donnée de l'orientation.

(i) Système en présence de deux ondes d'amplitudes différentes ayant des polarisations circulaires orthogonales

Cherchons donc à déterminer la valeur stationnaire $\langle J_z \rangle_{\text{st}}$ de l'orientation en présence de deux champs polarisés σ^+ (resp. σ^-), d'intensité I_+ (resp. I_-). Dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, les populations stationnaires $\pi_{\pm, \text{st}}$ sont solutions de :

$$\begin{cases} I_+ \pi_{-, \text{st}} = I_- \pi_{+, \text{st}} \\ \pi_{-, \text{st}} + \pi_{+, \text{st}} = 1 \end{cases} \quad (\text{II.4.2-6})$$

et s'écrivent donc :

$$\begin{cases} \pi_{-, \text{st}} = \frac{I_-}{I_- + I_+} \\ \pi_{+, \text{st}} = \frac{I_+}{I_- + I_+} \end{cases} \quad (\text{II.4.2-7})$$

d'où l'on déduit finalement la valeur stationnaire de l'orientation :

$$\langle J_z \rangle_{\text{st}} = (\hbar/2) \frac{I_+ - I_-}{I_- + I_+} \quad (\text{II.4.2-8})$$

qui prend en particulier la valeur 0 dans le cas d'une onde pompe polarisée linéairement selon x (même intensité des composantes σ^+ et σ^-).

Mentionnons également que le déséquilibre d'intensité entre les deux composantes σ^+ et σ^- s'accompagne de déplacements lumineux différents pour chacun des deux sous-niveaux Zeeman, et donc en principe d'un déséquilibre de population supplémentaire décrit par le facteur de Boltzmann. Toutefois, dans le cas des vapeurs atomiques, l'ordre de grandeur de la différence d'énergie liée aux déplacement lumineux est toujours totalement négligeable devant l'énergie d'agitation thermique $k_B T$, de telle sorte que l'on peut négliger cette cause de modification de

l'orientation du milieu atomique (ce qui ne serait pas le cas pour les mélasses optiques à gradient spatial de déplacement lumineux, voir chapitre III).

(ii) Système en présence de la sonde

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'influence de la sonde sur le milieu est équivalente à une modulation temporelle à la fréquence δ de l'amplitude des composantes σ^\pm du champ pompe. En suivant une démarche analogue à celle employée au §II.4.1.a, et en portant la valeur des intensités des composantes σ^\pm en présence de la sonde déduites de (II.4.2-4) et normalisées à l'intensité pompe :

$$\begin{cases} I_+ = 1 - 2\varepsilon \cos(\delta t) \\ I_- = 1 + 2\varepsilon \cos(\delta t) \end{cases} \quad (\text{II.4.2-9})$$

dans (II.4.2-8), il est immédiat de déduire l'effet de la sonde sur le milieu. Celle-ci induit une modulation temporelle de l'orientation du milieu, qui passe de la valeur 0 en l'absence de sonde, à la valeur :

$$\langle J_z \rangle_{st} = \varepsilon (\hbar/2) \frac{\gamma_0}{i\delta - \gamma_0} e^{-i\delta t} + \text{c. c.} \quad (\text{II.4.2-10})$$

(iii) Allure du spectre de transmission de la sonde

Il ne reste plus, pour caractériser complètement la partie centrale du spectre de transmission de la sonde, qu'à montrer comment la modulation de l'orientation du milieu conduit à une modification de l'intensité de l'onde sonde. Il est tout d'abord bien connu qu'un milieu pour lequel l'orientation est différente de 0 présente une biréfringence circulaire [Rq.II-12], susceptible d'induire une rotation Faraday pour une onde polarisée linéairement. Ainsi, l'orientation donnée par l'Eq. (II.4.2-10) va-t-elle contribuer à une rotation Faraday modulée à la fréquence δ de la polarisation de l'onde pompe. Le champ ainsi obtenu à la sortie du milieu possède une composante se propageant dans la même direction, et ayant mêmes fréquence et polarisation (à cause de la rotation Faraday modulée temporellement) que l'onde sonde, et pouvant donc interférer avec elle. Dans la mesure où l'orientation est déphasée par rapport aux champs appliqués, puisqu'elle évolue avec une constante de temps $1/\gamma_0$, le transfert de puissance entre pompe et sonde se présente sous forme d'une résonance dispersive de demi-largeur γ_0 . Quantitativement, nous utilisons

[Rq.II-12] Ceci apparaît clairement en remarquant que les coefficients de Clebsch-Gordan associés aux deux polarisations circulaires sont différents pour un sous-niveau Zeeman donné.

l'expression (R.5-6) de la densité de puissance transférée du milieu atomique vers l'onde sonde, qui permet d'exprimer le gain (ou l'absorption) en fonction de la valeur moyenne d'un opérateur \wp décrivant le processus de diffraction de l'onde pompe sur le milieu atomique modifié par la sonde. On montre facilement que l'opérateur \wp prend ici la forme suggestive :

$$\wp = -\frac{2}{3} J_z / \hbar \quad (\text{II.4.2-11})$$

En portant (II.4.2-10) dans (R.5-6), on aboutit finalement à la limite des grands désaccords considérée ici, à l'expression :

$$\mathcal{P} = \frac{1}{90} N \hbar \omega \frac{\Omega_0^4}{\Delta^3} \frac{\Gamma \delta}{\delta^2 + \gamma_0^2} \quad (\text{II.4.2-12})$$

L'Eq. (II.4.2-12) montre l'existence d'une résonance Rayleigh stimulée d'allure dispersive, et de demi-largeur égale au taux de pompage optique γ_0 . Cette structure Rayleigh change de signe avec le désaccord laser, et à la différence de la résonance Rayleigh des atomes à deux niveaux, a l'allure de la Fig. II.3.2-2 dans le cas d'un désaccord négatif, et celle de la Fig. II.3.2-3 pour un désaccord positif (conformément à l'observation expérimentale de [Val92]). La comparaison des dépendances des expressions (II.4.2-12) et (II.4.1-16) en fonction des paramètres du laser pompe, montre que le transfert apparaît ici à un ordre inférieur en intensité, ce qui résulte du fait que dans le cas des atomes à plusieurs niveaux, la polarisation du milieu n'implique que des observables de l'état fondamental, et aucunement la population du niveau excité.

b. Généralisation aux cas d'autres transitions et géométries d'interaction

Si l'étude précédente concernant le cas simple d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ a permis de mettre en évidence l'existence d'un effet Rayleigh stimulé ayant des caractéristiques différentes de celui des atomes à deux niveaux, elle ne recouvre pas entièrement toute la généralité de ce type de processus. En effet, dans le cas d'une transition impliquant un état fondamental de moment cinétique supérieur à 1/2, la dynamique du système va devenir plus riche, faisant intervenir plusieurs modes propres d'évolution et plusieurs taux de relaxation. Il devient alors nécessaire, pour parvenir à la forme exacte de la structure Rayleigh, d'appliquer rigoureusement la méthode modale décrite au §II.2.2, ce qui conduit généralement à une résonance Rayleigh stimulée résultant de la somme de plusieurs courbes de largeurs différentes. S'il ne saurait être question ici de traiter ce problème dans le détail, il est intéressant d'essayer de dégager les caractéristiques communes aux différentes structures afin de déterminer les critères généraux définissant ce type d'effet

Rayleigh stimulé. Suivant notre classification, nous passerons en revue successivement trois critères, que l'on trouvera résumés dans le Tableau II.4.2-1.

(i) Milieu diffuseur

On reste dans le cadre des vapeurs atomiques diluées, sans collision, de température typique 400° K. Les faisceaux lasers sont accordés au voisinage d'une transition $J_g \rightarrow J_e$ supposée fermée, avec $J_g > 0$. Le faisceau laser induit dans le niveau fondamental un élargissement des sous-niveaux de l'ordre de $\hbar\Gamma'$, des déplacements lumineux de l'ordre de $\hbar\Delta s_0$, ainsi que des différences de populations et des cohérences Zeeman entre sous-niveaux.

(ii) Processus de relaxation

Nous nous plaçons dans le cas où la dynamique du milieu est réductible à l'état fondamental (limite de faible saturation de la transition atomique). De même que la largeur des sous-niveaux Zeeman est toujours de l'ordre de $\hbar\Gamma'$, toute observable du niveau fondamental relaxera avec un taux de l'ordre de Γ' sous l'effet du pompage optique induit par l'onde pompe.

(iii) Excitation du milieu par la sonde et mécanisme de transfert de puissance

Quelle que soit la polarisation (linéaire ou circulaire) retenue pour l'onde pompe, on choisira toujours une onde sonde colinéaire et de même sens que la pompe (à cause des contraintes liées à l'effet Doppler), mais de polarisation *différente* (en pratique orthogonale [Rq.II-13]). L'effet de la sonde est alors d'induire dans le milieu une modulation temporelle à la fréquence δ des observables orientation et alignement, par modification du processus de pompage optique. Ces observables ne correspondent *a priori* pas à une mode propre dynamique du système, de telle sorte qu'elles suivront l'excitation de la sonde de manière complexe, en faisant intervenir plusieurs temps de réponse différents, bien que de l'ordre de $1/\Gamma'$. Finalement, le mécanisme de transfert de puissance de l'onde pompe vers la sonde par l'intermédiaire du milieu atomique présentera une grande variabilité selon les cas, mais en faisant intervenir deux grands types de phénomènes. L'existence d'une magnétisation modulée à la fréquence de la sonde induira une biréfringence circulaire modulée temporellement dans le milieu, permettant de diffuser une partie de l'onde pompe en un champ ayant les mêmes caractéristiques que l'onde sonde, et pouvant ainsi interférer avec elle. La présence d'un alignement se manifestera également sous la forme d'une biréfringence

[Rq.II-13] Un même choix de polarisation pour les ondes pompe et sonde rendrait en effet la détection plus délicate.

linéaire ayant un effet analogue sur la pompe, et contribuant à la modification de l'intensité de l'onde sonde. Par l'intermédiaire de ces deux effets, de l'énergie sera transférée de la pompe vers la sonde, et conduira à une structure Rayleigh stimulée au centre du spectre de transmission, apparaissant comme une combinaison sensible au choix de polarisation de la sonde de courbes dispersives ayant des largeurs différentes.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Gaz dilué, $T \approx 400\text{K}$	Atomes à plusieurs sous-niveaux Zeeman dans le fondamental	Élargissement des sous-niveaux Zeeman du fondamental $\approx \hbar\Gamma'$
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
Taux de pompage optique $\Gamma' \approx 100\text{ kHz}$	Pompage optique dans le niveau fondamental	A l'origine même de la relaxation Faible paramètre de saturation
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Modulation de l'orientation ou de l'alignement du milieu	Polarisation orthogonale à celle du champ pompe	Biréfringence linéaire ou circulaire

Tableau II.4.2-1 : Caractéristiques des résonances Rayleigh stimulées des vapeurs atomiques d'atomes à plusieurs sous-niveaux Zeeman dans l'état fondamental.

4.3. Résonance Raman induite par le recul

Nous revenons au cas des résonances Raman induites par le recul, précédemment interprétées au §I.4.3 en termes de transitions Raman stimulées entre états externes quantifiés de l'atome à deux niveaux. Nous montrons ici qu'il est également possible d'en donner une interprétation en termes d'effet Rayleigh stimulé, impliquant la création par la sonde d'une

modulation spatio-temporelle de densité atomique ayant un faible taux de relaxation, et montrant ainsi toute l'ambiguïté liée aux résonances impliquant l'état *externe* d'un atome.

Dans la situation expérimentale du §I.4.3, l'existence d'un angle non nul θ entre les faisceaux pompe et sonde fait apparaître dans l'opérateur de couplage (I.4.3-2) un terme de la forme $e^{i(\vec{k}-\vec{k}_p)\cdot\vec{R}}$ impliquant l'opérateur position du centre de masse atomique \vec{R} , ainsi que la différence de vecteurs d'onde entre pompe et sonde. Ce terme étant non diagonal dans l'espace des impulsions, va induire des cohérences entre états externes d'impulsion différant d'une quantité $\hbar(\vec{k}-\vec{k}_p)$, à l'origine de l'effet Raman. Il est alors intéressant de regarder comment de telles cohérences externes se manifestent dans l'espace des positions, en utilisant la représentation de Wigner $W(\vec{r}, \vec{p}, t)$ de la matrice densité :

$$W(\vec{r}, \vec{p}, t) = \frac{1}{(2\pi\hbar)^3} \int d^3\vec{q} \langle \vec{p} + \vec{q}/2 | \sigma | \vec{p} - \vec{q}/2 \rangle e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}/\hbar} \quad (\text{II.4.3-13})$$

On voit ainsi immédiatement que l'existence de cohérences entre états externes d'impulsions différant de $\hbar(\vec{k}-\vec{k}_p)$ correspond dans l'espace des positions à une modulation spatiale de la densité atomique caractérisée par le vecteur d'onde $\vec{k}-\vec{k}_p$ [Rq.II-14]. Cette modulation n'est autre que celle de l'intensité totale du champ laser, et la situation étudiée devient très semblable à celle rencontrée dans l'étude de l'effet "Rayleigh" des milieux moléculaires. Plus précisément, l'absorption de la lumière étant totalement négligeable dans les milieux dilués et pour les grands désaccords lasers envisagés ici, on se trouve dans la situation de l'effet Rayleigh électrostrictif où la densité de centres diffuseurs suit la modulation d'intensité des ondes pompe et sonde. Il reste à montrer comment cette modulation de densité atomique conduit à une résonance ayant la forme d'une dérivée de gaussienne et de largeur proportionnelle à la largeur Doppler du milieu.

Comme au §I.4.3, nous désignons par γ la taux de relaxation de la modulation spatiale de densité atomique, et nous le supposons faible devant $\theta k\bar{v}$. Considérons à présent la classe d'atomes d'impulsion \vec{p} . La diffraction de l'onde pompe sur le réseau de densité associé, évoluant à la fréquence $\delta - (\vec{k}-\vec{k}_p)\cdot\vec{p}/M$ (M étant la masse atomique) en raison de l'effet Doppler, va alors donner lieu à une résonance Rayleigh d'allure dispersive, de demi-largeur γ (en raison du temps de réponse fini $\approx 1/\gamma$ du milieu), mais centrée autour de $\delta = (\vec{k}-\vec{k}_p)\cdot\vec{p}/M$. Lors du calcul de la moyenne de ces résonances sur la distribution stationnaire d'impulsion, et dans l'hypothèse d'une largeur Doppler du milieu très grande devant γ , la contribution de chaque groupe de vitesse

[Rq.II-14] Ce résultat ne se généralise pas directement au cas d'un atome à plusieurs niveaux. Il est en effet possible dans un tel cas que l'onde sonde induise une modulation spatiale de la *densité d'orientation*, sans qu'elle affecte la *densité atomique*. Une telle situation se rencontre par exemple dans la situation du §II.4.2.a.

atomique apparaît comme étant proportionnelle au produit de la dérivée d'une fonction de Dirac centrée en $\delta = (\vec{k} - \vec{k}_p) \cdot \vec{p}/M$ et de la distribution d'impulsion. Par conséquent, la structure centrale sera proportionnelle à la dérivée en $M\delta/\theta k$ de la fonction de distribution stationnaire d'impulsion, ce qui correspond à l'expression (I.4.3-7) obtenue par une approche en termes d'effet Raman stimulé.

Ainsi, l'existence de cohérences dans l'espace des impulsions impliquant l'existence d'une modulation spatiale de la densité atomique, il est possible de donner une interprétation en termes d'effet Rayleigh ou Raman stimulé pour ces résonances impliquant l'état externe de l'atome. Il n'est toutefois pas possible de considérer ce processus comme étant identique à l'effet Rayleigh électrostrictif des molécules. En effet, dans le cas des vapeurs atomiques diluées, les centres diffuseurs ont le temps de parcourir plusieurs pas de la modulation spatiale d'intensité avant que leur vitesse ne change de façon appréciable (mouvement de type vol libre, non diffusif), de telle sorte que la densité atomique associée à une certaine classe de vitesse a le temps d'atteindre un état stationnaire, ce qui est à l'origine de la forme particulière de la résonance, et de la proportionnalité entre sa largeur et la largeur Doppler du milieu. *A contrario*, comme nous l'avons vu au §II.3.2 dans le cas des milieux moléculaires denses, les molécules ont un mouvement diffusif de pas très inférieur à celui de la modulation d'intensité, et l'effet d'élargissement Doppler devient donc négligeable devant le taux de relaxation de la modulation de densité par diffusion spatiale. On peut donc considérer que les milieux moléculaires sont le siège d'un *effet Rayleigh électrostrictif diffusif*, tandis que les milieux atomiques font apparaître un *effet Rayleigh électrostrictif non diffusif*, qui peut être considéré de manière équivalente comme un *effet Raman induit par le recul* [Rq.II-15].

Cette interprétation des résonances Raman induites par le recul par un effet Rayleigh électrostrictif permet également de déterminer les conditions expérimentales les plus favorables à son observation. Il est en effet clair que l'importance de ces résonances va dépendre crucialement de l'efficacité avec laquelle les atomes vont "suivre" la modulation d'intensité des lasers. Or cette efficacité peut être caractérisée par le rapport entre la profondeur du potentiel électrostrictif normalisée à ϵ , et l'énergie d'agitation thermique $k_B T$. Or, dans le cas des systèmes atomiques, le potentiel électrostrictif n'est autre que le potentiel associé aux déplacements lumineux, de profondeur proportionnelle au produit du désaccord à résonance par le paramètre de saturation de la transition atomique. En employant un laser continu, et compte tenu du fait que le désaccord doit être supérieur à la largeur Doppler du milieu, le rapport entre la profondeur de modulation du

[Rq.II-15] Il semble en effet indiqué d'associer le terme de *recul* à l'effet *Raman* puisqu'il met l'accent sur l'*impulsion* atomique, tandis que l'effet *Rayleigh* se verra associer l'origine *électrostrictive* de la modulation de *densité* atomique.

potentiel optique (normalisée à ϵ) et $k_B T$ sera toujours très inférieur à 1, et la résonance Raman induite par le recul sera difficilement observable. Il semble par contre que les mélasses optiques sub-Doppler, pour lesquelles ce rapport est précisément de l'ordre de l'unité, soit le milieu de choix pour l'observation d'une telle résonance [Rq.II-16]. Nous avons résumé les caractéristiques attendues pour l'effet Rayleigh électrostrictif non diffusif dans le Tableau II.4.3-1, que l'on comparera avec intérêt au Tableau II.3.2-1.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Gaz dilué de faible température	Atomes à deux niveaux	—
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
Très petit devant $2 \sin(\theta/2) k \bar{v}$ Largeur déterminée par effet Doppler : $2 \sin(\theta/2) k \bar{v}$	Régime non diffusif	θ : angle entre pompe et sonde
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Modulation de densité par <i>électrostriction</i>	θ : angle entre pompe et sonde	Diffraction de Bragg sur réseau de densité

Tableau II.4.3-1 : Caractéristiques de l'effet Rayleigh électrostrictif non diffusif des atomes à deux niveaux.

[Rq.II-16] Nous montrerons au chapitre IV (§IV.6.2) qu'un effet analogue est attendu dans le cas d'une mélasse $\sigma^+ - \sigma^-$ unidimensionnelle, de très faible pression et température. Nous verrons également que son amplitude est bien proportionnelle au rapport de la profondeur de modulation du potentiel associé aux déplacements lumineux et de l'énergie d'agitation thermique.

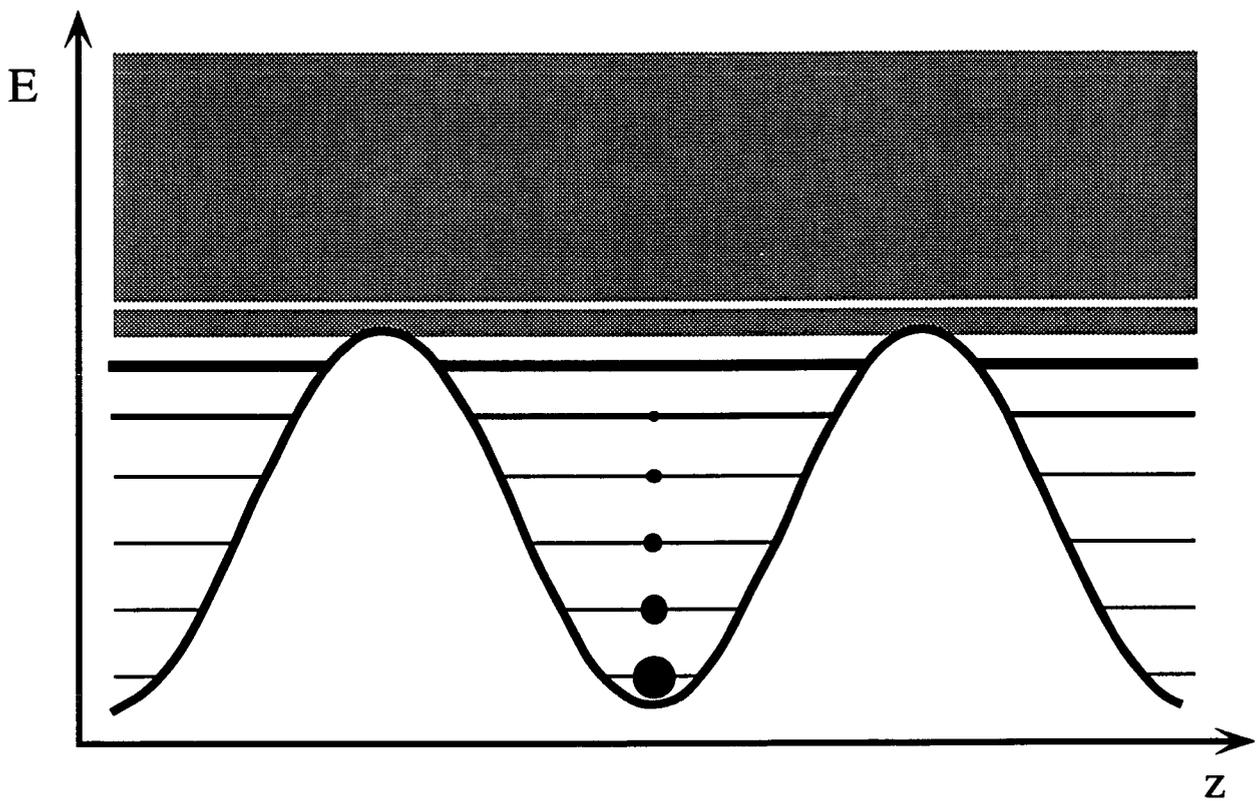
5. Conclusion

L'effet Rayleigh stimulé est associé à l'excitation d'observables lentes (orientation de molécules anisotropes, densité, magnétisation, alignement) par l'action conjointe d'une onde pompe et d'une onde sonde. La diffraction de la pompe sur ces observables, qui ne sont pas en phase avec l'excitation en raison du temps de réponse fini du système diffuseur, conduit à un transfert de puissance entre ondes pompe et sonde, présentant un comportement résonnant lorsque la différence de fréquence entre les deux ondes est de l'ordre de l'inverse d'un temps de réponse du milieu. Une telle résonance, d'allure généralement dispersive, fournit donc des informations sur la *dynamique* du milieu diffuseur.

Nous avons dégagé trois critères portant sur les caractéristiques du milieu diffuseur, du processus de relaxation intervenant dans ce milieu, et du mécanisme d'excitation du milieu par la sonde, permettant une classification des différents processus Rayleigh dont nous avons connaissance, tant dans les systèmes moléculaires qu'atomiques. Cette méthode de classification a d'une part été utilisée dans le cas des milieux moléculaires denses, où l'on a décrit successivement les effets "Rayleigh-wing" (lié à l'orientation de molécules anisotropes le long du champ électrique local), Rayleigh électrostrictif diffusif, et Rayleigh thermodiffusif (dus à une modulation spatiale de la densité). Et d'autre part dans le cas des vapeurs atomiques, où l'on a distingué le cas des atomes à deux niveaux (pour lequel une interprétation de la résonance Rayleigh a été donnée en termes d'interférence quantique entre processus d'absorption des photons sondes), puis la situation des atomes possédant plusieurs sous-niveaux Zeeman dégénérés dans l'état fondamental (où l'effet Rayleigh stimulé est lié au pompage optique et à la création d'observables atomiques) ; et enfin le cas des résonances Raman induites par le recul faisant intervenir les degrés de liberté externes de l'atome, et que nous avons réinterprétées comme un effet Rayleigh électrostrictif non diffusif, par opposition au cas des milieux moléculaires denses. L'étude des processus Rayleigh dans les systèmes atomiques va se poursuivre aux chapitres III et IV consacrés aux mélasses optiques unidimensionnelles, pour lesquelles tant l'état interne que l'état externe des atomes est déterminé uniquement par l'interaction avec les faisceaux de refroidissement, et qui présente en cela des caractéristiques fondamentalement différentes des vapeurs atomiques.

C H A P I T R E I I I

SPECTROSCOPIE DES MÉLASSES OPTIQUES 1D LIN \perp LIN



“Quand vous avez éliminé l'impossible, ce qui reste, même improbable, doit être la vérité.”

Arthur Conan Doyle (1859-1930). Le signe de quatre.

1. Introduction

Le but de ce chapitre est de donner une interprétation physique des différents spectres observés expérimentalement dans les mélasses optiques 1D lin⊥lin [Ver92]. La méthode théorique de calcul des spectres ayant fait l'objet d'une publication ([Cou92] jointe en annexe III.E), nous ne reviendrons pas en détail sur celle-ci, et nous en rappellerons simplement le principe lorsque cela sera nécessaire. Afin de mieux sérier les problèmes, et de ne pas rendre ce chapitre inutilement long, nous nous intéresserons ici exclusivement au cas des spectres de transmission, renvoyant la discussion des spectres de conjugaison de phase aux articles théoriques, ainsi qu'à [Lou93b].

Nous débuterons par un résumé des principaux résultats de la théorie du refroidissement 1D lin⊥lin, en considérant le cas modèle d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. Nous rappellerons d'une part la description classique de l'effet "Sisyphé" responsable du ralentissement des atomes (§III.2), et d'autre part les éléments du formalisme quantique adapté à la description des propriétés physiques de la mélasse au voisinage de l'optimum du refroidissement [Cas91a], et qui sont indispensables pour la suite de notre étude (§III.3). Nous aurons ainsi l'occasion de mettre en évidence le phénomène de *localisation* des atomes au fond des puits du potentiel périodique associé aux déplacement lumineux, conduisant à une structure vibrationnelle pour les niveaux d'énergie du centre de masse, ainsi que l'existence d'un ordre anti-ferromagnétique à grande échelle de type cristallin dans la mélasse optique.

Après avoir rappelé et commenté les résultats expérimentaux obtenus dans une mélasse optique 1D lin⊥lin d'atomes de césium (§III.4), nous aborderons l'interprétation physique des spectres de transmission en considérant tout d'abord le cas simple d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. Nous montrerons tout d'abord que l'une des principales caractéristiques des spectres expérimentaux, à savoir la présence de résonances de largeurs très inférieures au taux de diffusion de la lumière par les atomes, est liée à la localisation atomique, responsable d'un allongement de la durée de vie des populations et des cohérences entre niveaux de vibration (effet Lamb-Dicke) (§III.5). Nous considérerons ensuite le cas des résonances Raman stimulées entre niveaux vibrationnels, qui nous permettra de mettre en évidence l'anharmonicité du potentiel lumineux (§III.6). Nous aborderons alors l'étude détaillée des structures Rayleigh stimulées en distinguant les deux situations étudiées expérimentalement, selon que la polarisation linéaire de la sonde est parallèle (||) ou orthogonale (⊥) à celle de l'onde pompe se propageant dans la même direction qu'elle (§III.7). Nous étudierons en particulier les propriétés des modes propres

d'évolution des populations, que nous classerons en plusieurs familles, certaines correspondant à des processus de redistribution de populations entre niveaux liés, associées à des taux de relaxation allongés par effet Lamb-Dicke, et d'autre impliquant les niveaux quasi-libres, décrivant soit des processus de diffusion dans l'espace des impulsions (mécanisme de chauffage de la mélasse), soit des processus de pompage optique entre états excités (origine du refroidissement "Sisyphé"). Nous décrirons ensuite le mécanisme de modification du milieu par la sonde, et nous interpréterons les résonances Rayleigh stimulées en termes de diffraction des ondes pompes sur les réseaux de densité ou d'orientation modulés temporellement par la sonde. Nous montrerons alors que la résonance Rayleigh observable dans le cas de polarisation \parallel fournit des renseignements sur l'ordre anti-ferromagnétique à grande échelle de la mélasse optique. Nous terminerons en considérant le cas des transitions atomiques de moment cinétique plus élevé, comme la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ du césium (§III.8). Nous discuterons en particulier le phénomène de variation résonnante des populations des niveaux vibrationnels en fonction de la profondeur des puits de potentiel, et nous montrerons qu'un tel effet pourrait être mis en évidence expérimentalement par spectroscopie Rayleigh de la mélasse optique à grand désaccord.

2. Rappels : le mécanisme de refroidissement "Sisyphé" [Dal89]

2.1. État interne d'un atome au repos

Nous considérons ici une mélasse 1D lin⊥lin dans le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, et nous montrons que l'état interne et les énergies des sous-niveaux Zeeman d'un atome au repos dépendent fortement de sa position z .

Ainsi, au point $z=0$ où la polarisation du champ est σ^- (Fig. III.2.1-1), l'atome est pompé optiquement dans le sous-niveau Zeeman $|g, -\rangle$, de telle sorte que les populations stationnaires de $|g, -\rangle$ et $|g, +\rangle$ sont respectivement égales à 1 et 0. De plus, le couplage de l'atome avec un champ σ^- étant trois fois plus intense pour une transition partant de l'état $|g, -\rangle$ que de l'état $|g, +\rangle$ (dans le rapport des carrés des coefficients de Clebsch-Gordan rappelés sur la Fig. III.2.1-1), le déplacement lumineux $\hbar\Delta'$ de $|g, -\rangle$ est égal à trois fois celui de $|g, +\rangle$ (nous considérons ici le cas où les faisceaux lasers sont accordés du côté rouge de la résonance atomique, de telle sorte que les deux déplacements lumineux sont négatifs). De la même façon,

dans le cas d'un atome situé en $z=\lambda/4$ où la polarisation du champ est σ^+ (Fig. III.2.1-1), les conclusions précédentes sont inversées. Les populations stationnaires de $|g,-\rangle$ et $|g,+\rangle$ sont respectivement égales à 0 et 1, car l'atome est à présent pompé optiquement dans le sous-niveau $|g,+\rangle$, dont le déplacement lumineux est maintenant trois fois plus important que celui du niveau $|g,-\rangle$. Enfin, en un point où la polarisation du champ est linéaire ($z=\lambda/8$ ou $z=3\lambda/8$), les populations stationnaires des sous-niveaux $|g,-\rangle$ et $|g,+\rangle$ sont toutes deux égales (à $1/2$), de même que les déplacements lumineux qui prennent alors une valeur correspondant aux deux tiers de la valeur extrême associée à une polarisation circulaire.

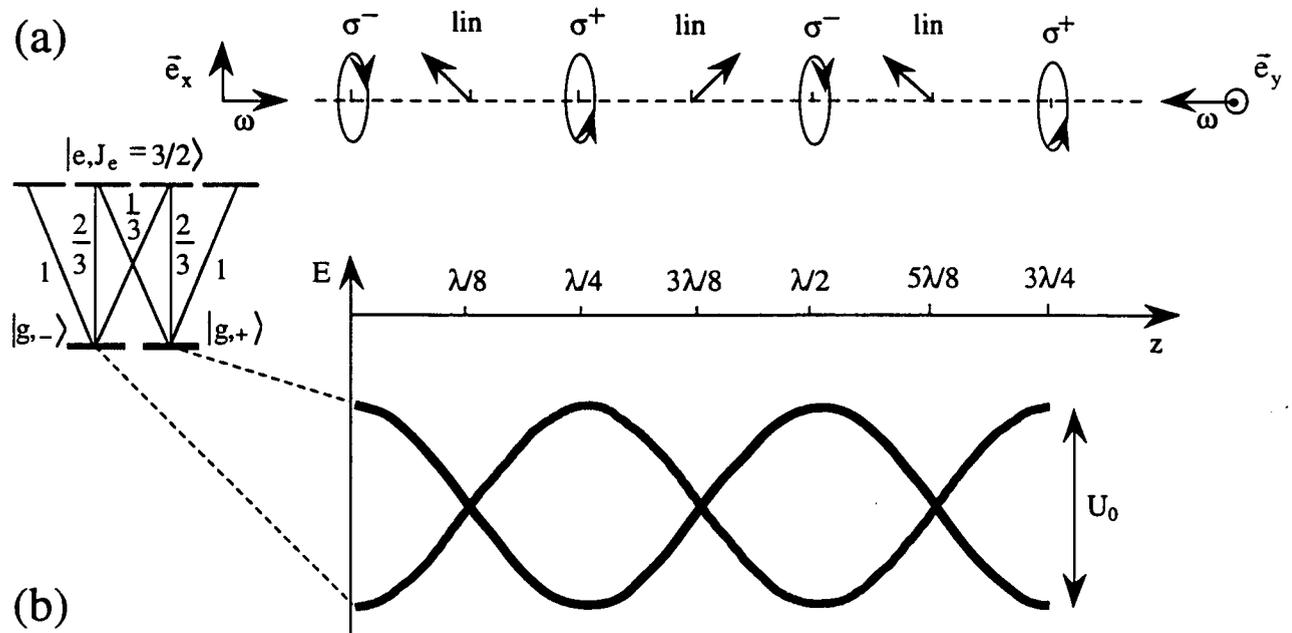


FIG. III.2.1-1 : Gradient d'ellipticité de la mélasse lin \perp lin et dépendance spatiale des déplacements lumineux des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. (a) Le champ de refroidissement résulte de la superposition de deux ondes lasers se propageant en sens opposés de même intensité, et ayant des polarisations linéaires orthogonales. Il est caractérisé par un gradient spatial d'ellipticité à l'échelle de la longueur d'onde. Pour un choix convenable de phase des ondes lasers, la polarisation est σ^- pour $z=0$, linéaire le long de $(\vec{e}_x - \vec{e}_y)/\sqrt{2}$ pour $z=\lambda/8$, σ^+ pour $z=\lambda/4$, et linéaire le long de $(\vec{e}_x + \vec{e}_y)/\sqrt{2}$ pour $z=3\lambda/8$. (b) Ce gradient d'ellipticité se traduit par une dépendance spatiale sinusoïdale des déplacements lumineux des sous-niveaux Zeeman du niveau fondamental, donnant lieu à un potentiel lumineux périodique (période $\lambda/2$) de profondeur U_0 .

Ces différents résultats sont résumés sur la Fig. III.2.1-2, où l'on a représenté en fonction de z les déplacements lumineux, ainsi que les populations stationnaires des deux sous-niveaux Zeeman d'un atome au repos (figurées par des disques noirs de taille proportionnelle aux populations). Il apparaît clairement sur cette figure que le sous-niveau d'énergie la plus basse est toujours le plus peuplé.

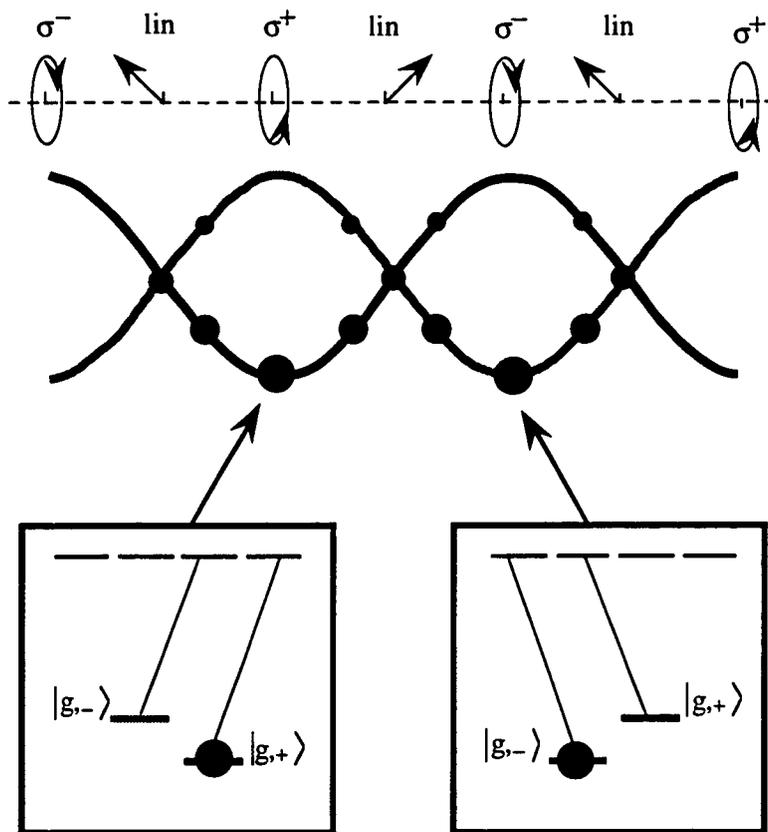


FIG. III.2.1-2 : Dépendance spatiale des déplacements lumineux et des populations stationnaires (représentées par des disques noirs) des sous-niveaux Zeeman d'un atome au repos, dans le cas où les lasers sont accordés du côté rouge de la transition atomique. En tout point, le sous-niveau Zeeman d'énergie la plus basse (ayant le déplacement lumineux le plus important) est toujours le plus peuplé.

2.2. Cas d'un atome en mouvement : effet "Sisyphé"

On considère à présent le cas d'un atome en mouvement, et l'on montre qu'en raison de l'intervalle de temps fini τ' requis entre deux cycles de pompage optique entre les deux sous-niveaux Zeeman, l'atome subit un mécanisme de ralentissement. Supposons par exemple que l'atome se trouve initialement au fond d'un puits de potentiel, par exemple dans le niveau $|g,-\rangle$ en $z=0$, et qu'il se déplace vers la droite (Fig. III.2.2-1). Si la vitesse atomique est telle que l'atome parcourt une distance $\lambda/4$ durant l'intervalle de temps τ' , l'atome va rester en moyenne dans le même sous-niveau Zeeman, et donc gravir la colline de potentiel jusqu'au sommet, avant d'être pompé optiquement dans l'autre sous-niveau Zeeman, et d'ainsi se retrouver au fond du puits de potentiel associé au niveau $|g,+\rangle$, situé en $z=\lambda/4$. Partant de là, la séquence se répète selon la même succession d'événements (Fig. III.2.2-1).

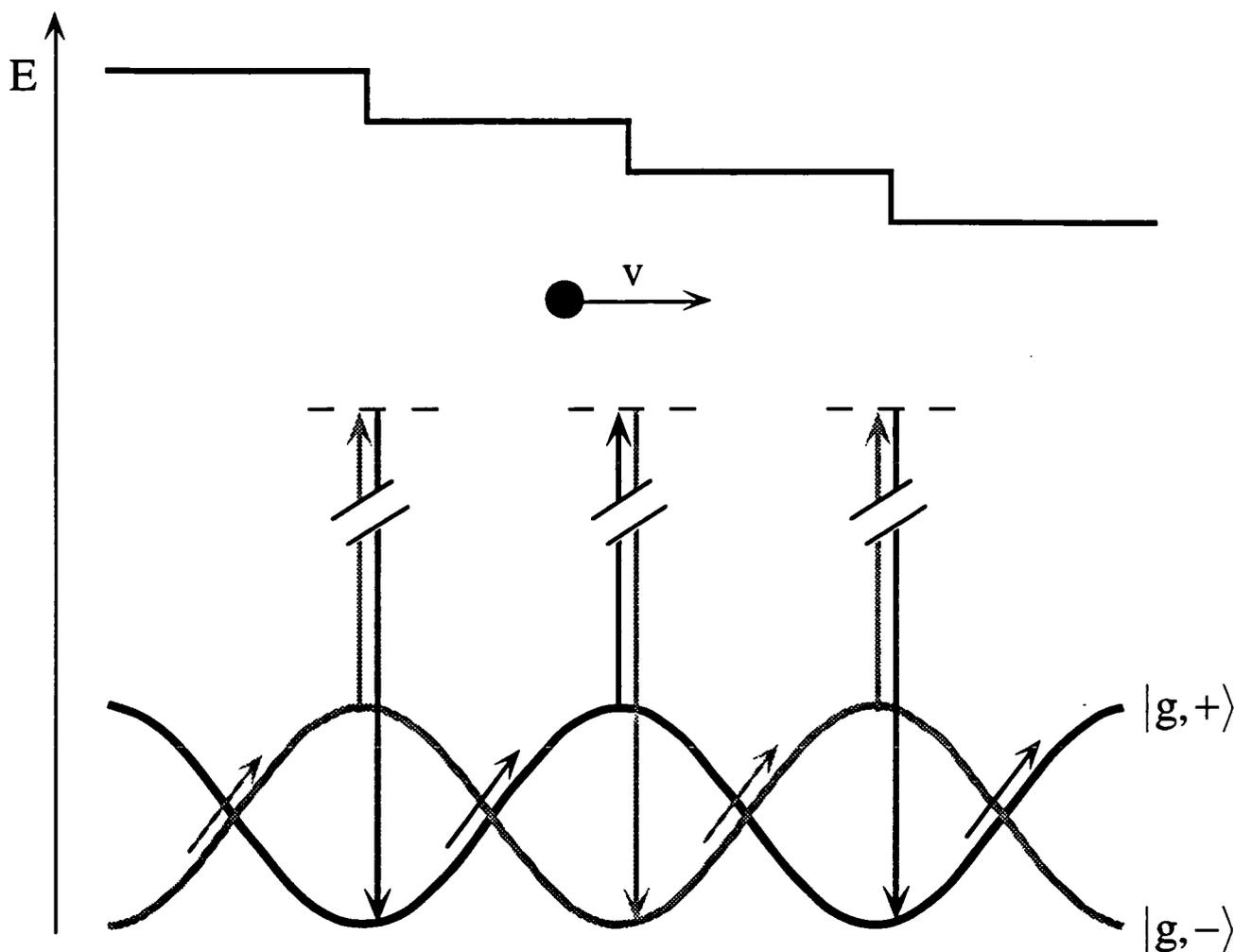


FIG III.2.2-1 : Effet "Sisyphus" dans une mélasse lin-lin. Du fait de la durée finie d'un cycle de pompage optique, l'atome monte en moyenne plus de collines de potentiel qu'il n'en descend, perdant ainsi progressivement de l'énergie cinétique. On a ici considéré une vitesse atomique v telle que $v\tau' \approx \lambda/4$, de telle sorte que l'atome parcourt une distance $\lambda/4$ entre deux cycles de pompage optique. L'efficacité du processus de refroidissement est alors proche de son optimum.

Il apparaît ainsi qu'en raison du temps fini de pompage optique τ' , l'atome gravit toujours des collines de potentiel, transformant une partie de son énergie cinétique en énergie potentielle, et conduisant au ralentissement de l'atome [Rq.III-1], [Rq.III-2]. Notons que cette transformation s'effectue par processus de redistribution stimulée de photons entre les deux ondes lasers contrapropagatives, l'irréversibilité étant apportée par le cycle de pompage optique qui évacue

[Rq.III-1] L'analogie avec le supplice du roi de Corinthe Sisyphus, condamné par Zeus à rouler à jamais une grosse roche jusqu'en haut d'une montagne d'où elle redescend aussitôt, est à l'origine du nom (proposé par J. Dalibard et C. Cohen-Tannoudji) du mécanisme de refroidissement "Sisyphus", caractéristique des mélasses lin-lin.

[Rq.III-2] On peut montrer que ce processus est analogue à celui considéré au §II.4.2.a.

l'excès d'énergie potentielle (de l'ordre de la profondeur de potentiel U_0) sous la forme d'un photon spontané d'énergie supérieure à celle du photon laser absorbé.

3. Quantification des degrés de liberté externes [Cas91a]

Le mécanisme de refroidissement "Sisyphé" semble ainsi conduire l'atome à une situation où il a tellement perdu d'énergie cinétique qu'il ne peut plus gravir une nouvelle colline de potentiel, et reste ainsi piégé au fond d'un puits de potentiel où il peut classiquement osciller. Il convient pourtant de garder à l'esprit le fait que les processus de pompage optique sont susceptibles d'interrompre ce mouvement oscillatoire, voire même s'ils sont trop fréquents de le rendre totalement impossible. C'est ainsi que l'on est amené à distinguer entre deux régimes différents, l'un qualifié de *sautant* où l'atome subit de nombreux cycles de pompage optique durant une période d'oscillation, l'autre d'*oscillant* pour décrire le fait que l'atome effectue plusieurs oscillations au fond des puits de potentiel avant d'être interrompu dans son mouvement par un cycle de pompage optique [Cas91b]. Nous nous intéresserons par la suite exclusivement à ce dernier cas, qui correspond à l'optimum du refroidissement "Sisyphé" [Cas91b], et nous consacrons tout d'abord ce paragraphe au rappel de ses principales caractéristiques.

La situation considérée est celle décrite au §III.2 précédent : le champ de refroidissement est obtenu par superposition de deux ondes lasers de même longueur d'onde $\lambda=2\pi/k$, se propageant selon les directions $+z$ et $-z$. Ces ondes ont même fréquence ω , même amplitude E_0 , et sont respectivement polarisées linéairement selon Ox et Oy (Fig. III.2.1-1(a)). Nous utilisons les résultats et notations du §R.3.2 concernant les mélasses optiques unidimensionnelles.

Comme nous l'avons déjà mentionné, la partie réactive du couplage atome-lasers conduit à un potentiel périodique sinusoïdal $U_{\pm}^{(0)}(z)$ dépendant du sous-niveau Zeeman $|g, \pm\rangle$ de l'état fondamental (Fig. III.2.1-1(b)) :

$$U_{\pm}^{(0)}(z) = \frac{U_0}{2} [-2 \pm \cos(2kz)] \quad (\text{III.3-1})$$

avec :

$$U_0 = -\frac{2}{3} \hbar \Delta s_0 \quad (\text{III.3-2})$$

[Cas91b] Y. Castin, J. Dalibard et C. Cohen-Tannoudji, in *Light Induced Kinetic Effects on Atoms, Ions and Molecules*, édité sous la direction scientifique de L. Moi, S. Gozzini, C. Gabbanini, E. Arimondo, et F. Strumia (ETS Editrice, Pise, 1991), p. 363.

et :

$$s_0 = \frac{\Omega^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (\text{III.3-3})$$

où $\Omega = -2DE_0/\hbar$ est la fréquence de Rabi résonnante décrivant le couplage entre le dipôle atomique D et le champ, Γ est la largeur naturelle du niveau excité, et $\Delta = \omega - \omega_A < 0$ est le désaccord à résonance entre les ondes pompes (ω) et la fréquence atomique (ω_A). Cette partie réactive est caractérisée par la fréquence d'oscillation Ω_v des atomes au fond des puits de potentiel $U_{\pm}^{(0)}(z)$. Par exemple, au voisinage de $z=0$, le potentiel $U_{-}^{(0)}(z)$ peut être approximé par le potentiel harmonique $U_{-}^{(h)}(z)$:

$$U_{-}^{(h)}(z) = -\frac{3}{2}U_0 + U_0 k^2 z^2 \quad (\text{III.3-4})$$

et la fréquence d'oscillation Ω_v est alors donnée par :

$$\Omega_v = \frac{2U_0}{\hbar} \sqrt{\frac{E_R}{U_0}} \quad (\text{III.3-5})$$

où $E_R = \hbar^2 k^2 / 2M$ est l'énergie de recul des atomes de masse M .

La partie dissipative du couplage atome-rayonnement, associée aux processus d'absorption-émission spontanée, est caractérisée par le taux de pompage optique $\gamma_0 = 2\Gamma s_0/9$ égal au taux de *transfert* entre les deux sous-niveaux Zeeman $|g, +\rangle$ et $|g, -\rangle$, le taux de diffusion *total* des photons pompes par l'atome étant donné par [Rq.III-3] :

$$\Gamma = \Gamma s_0 \quad (\text{III.3-6})$$

La différence entre Γ et γ_0 provient du fait qu'un atome peut revenir à son état interne initial au cours d'un cycle absorption-émission spontanée, le facteur multiplicatif $2/9$ entre γ_0 et Γ ($\gamma_0 = 2/9\Gamma$), déjà rencontré au §II.4.2, étant lié aux valeurs particulières des coefficients de Clebsch-Gordan de la transition $J_g = 1/2 \rightarrow J_e = 3/2$.

Notre but étant de décrire les propriétés des atomes localisés, nous nous restreindrons ici au cas où la partie réactive du couplage atome-lasers est prépondérante sur la partie dissipative :

$$\Omega_v \gg \Gamma \quad (\text{III.3-7})$$

[Rq.III-3] La définition de Γ choisie ici diffère d'un facteur 2 de celle employée au chapitre "Rappels". Elle est en fait mieux adaptée à la situation des mélasses optiques où *deux* ondes pompes, et non *une seule*, sont présentes et contribuent aux processus d'absorption-émission spontanée.

et au domaine de faible saturation de la transition atomique :

$$s_0 \ll 1 \quad (\text{III.3-8})$$

qui correspondent à l'optimum de température [Cas91b]. La condition (III.3-7) signifie qu'un atome effectue classiquement plusieurs oscillations au fond des puits de potentiel avant que son mouvement ne soit interrompu par un cycle d'absorption-émission spontanée (condition de régime oscillant [Rq.III-4]). A profondeur de puits donnée, cette condition est associée à la limite des grands désaccords à résonance.

Dans ce régime, toutes les propriétés physiques du milieu peuvent être décrites au moyen des états propres du Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ associé au potentiel lumineux $U_{\pm}^{(0)}(z)$:

$$H_{\text{eff}}^{(0)} = \frac{P^2}{2M} + U_{-}^{(0)}(Z)|g, -\rangle\langle g, -| + U_{+}^{(0)}(Z)|g, +\rangle\langle g, +| \quad (\text{III.3-9})$$

où P et Z sont les opérateurs impulsion et position du centre de masse atomique. Ce Hamiltonien contient à la fois le terme d'énergie cinétique et la partie réactive du couplage atome-lasers, et est caractérisé par le seul paramètre sans dimension U_0/E_R . Du fait de la périodicité ($\lambda/2$) du potentiel, le spectre d'énergie des atomes possède une structure de bandes semblable à celles des électrons dans les solides. D'après le théorème de Bloch [Ash76], les états propres associés peuvent être indicés sous la forme $|n, q, \mu\rangle$, où n (entier positif) est l'indice de bande, $\mu = \pm$ désigne l'état interne $|g, \pm\rangle$, et q est l'indice de Bloch. q est *a priori* un paramètre continu appartenant à la première zone de Brillouin ($-k < q \leq k$), mais l'emploi habituel de conditions aux limites périodiques pour un échantillon de taille finie (un nombre entier de fois la périodicité $\lambda/2$ du potentiel) conduit à une discrétisation de cet indice [Rq.III-5]. Remarquons que pour des raisons de symétrie évidentes, les états propres $|n, q, -\rangle$ et $|n, q, +\rangle$ auront même énergie $E_{n,q}$. A titre illustratif, le spectre d'énergie du Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ est schématiquement représenté sur la Fig. III.3-1 dans le cas d'un potentiel lumineux de profondeur $U_0 = 100 E_R$.

[Rq.III-4] La condition (III.3-7) est une condition suffisante pour le régime oscillant. Il est en fait possible d'avoir un régime oscillant au fond des puits de potentiel même lorsque cette condition n'est pas satisfaite, en raison de l'allongement des durée de vie des niveaux de vibration les plus bas par effet Lamb-Dicke (voir §III.5).

[Ash76] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin, in *Solid State Physics* (HRW International Editions, New York, 1976) ; W.-K. Tung, in *Group Theory in Physics* (World Scientific, Singapore, 1985).

[Rq.III-5] Dans toute la suite, les calculs seront effectués dans une boîte de taille λ , de telle sorte que seuls les indices de bloch $q=0$ et $q=k$ seront pris en considération.

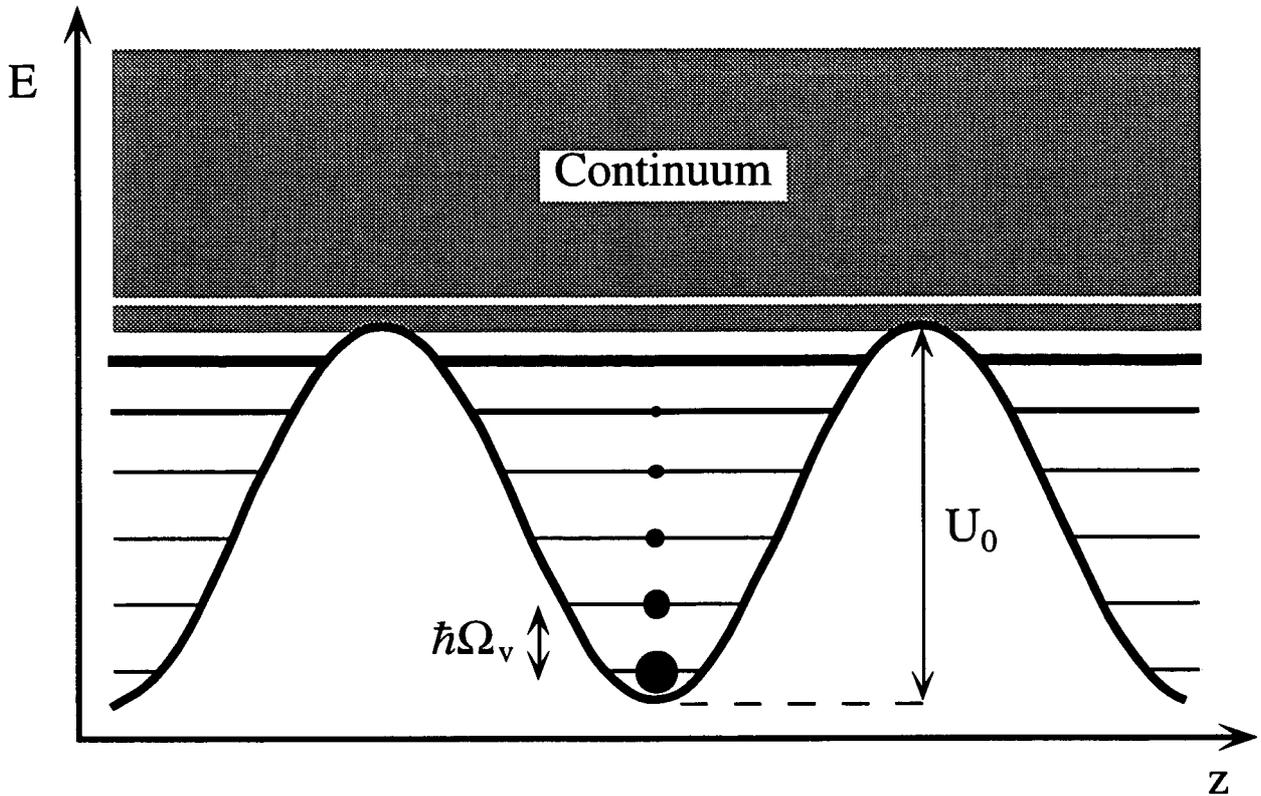


FIG. III.3-1 : Spectre d'énergie du Hamiltonien $H^{(0)}$ pour le cas d'un potentiel lumineux de profondeur $U_0 = 100 E_R$. On distingue la présence de 6 bandes liées de largeurs croissantes (liées au taux de transition par effet tunnel à travers les puits de potentiel). Le continuum d'énergie conserve dans sa partie basse la mémoire du potentiel sinusoïdal (bande d'énergie interdite au bas du continuum). Les disques noirs représentent les populations stationnaires des premiers niveaux de vibration.

L'intérêt essentiel de cette approche est que dans le régime où la condition (III.3-7) est satisfaite, la matrice densité stationnaire du système atomique est diagonale dans la base des états de Bloch $|n, q, \mu\rangle$. En effet, la condition $\Omega_v \gg \Gamma$ (distance entre bandes grande devant leur largeur radiative) permet d'utiliser l'approximation séculaire et de négliger toute cohérence entre bandes d'indices différents. Seule l'absence de cohérences à l'intérieur d'une même bande n'est pas évidente. Cette propriété provient en fait de l'invariance du système (et donc de la matrice densité stationnaire) par translation spatiale de $\lambda/2$, et par le fait que deux états d'indices de Bloch différents se transforment de façon distincte par une telle translation [Rq.III-6]. L'état du système atomique étant ainsi décrit uniquement en termes des populations $\pi_{n,q,\mu}^{(0)}$ des états de Bloch $|n, q, \mu\rangle$, il est alors possible d'obtenir la matrice densité stationnaire par résolution d'un système d'équations de taux de la forme [Cas91a] :

[Rq.III-6] Pour plus de détails, voir annexe A.III.

$$0 = -\gamma_{n,q,\mu} \pi_{n,q,\mu}^{(0)} + \sum_{n',q',\mu'} \gamma_{n',q',\mu' \rightarrow n,q,\mu} \pi_{n',q',\mu'}^{(0)} \quad (\text{III.3-10})$$

décrivant un état d'équilibre entre processus de départ (premier terme) et d'arrivée (second terme) entre les différents états de Bloch. La résolution d'une telle équation ne présente pas de difficulté, et conduit aux populations stationnaires des niveaux de bandes en fonction de la quantité sans dimension U_0/E_R , unique paramètre caractérisant l'état du système à la limite séculaire (III.3-7). Nous avons représenté sur la Fig. III.3-2 la dépendance des populations des cinq premiers niveaux de vibration en fonction du paramètre U_0/E_R . On trouve ainsi que la population des états liés est couramment de l'ordre de 60-80% de la population totale, indiquant une forte localisation atomique au fond des puits de potentiel.

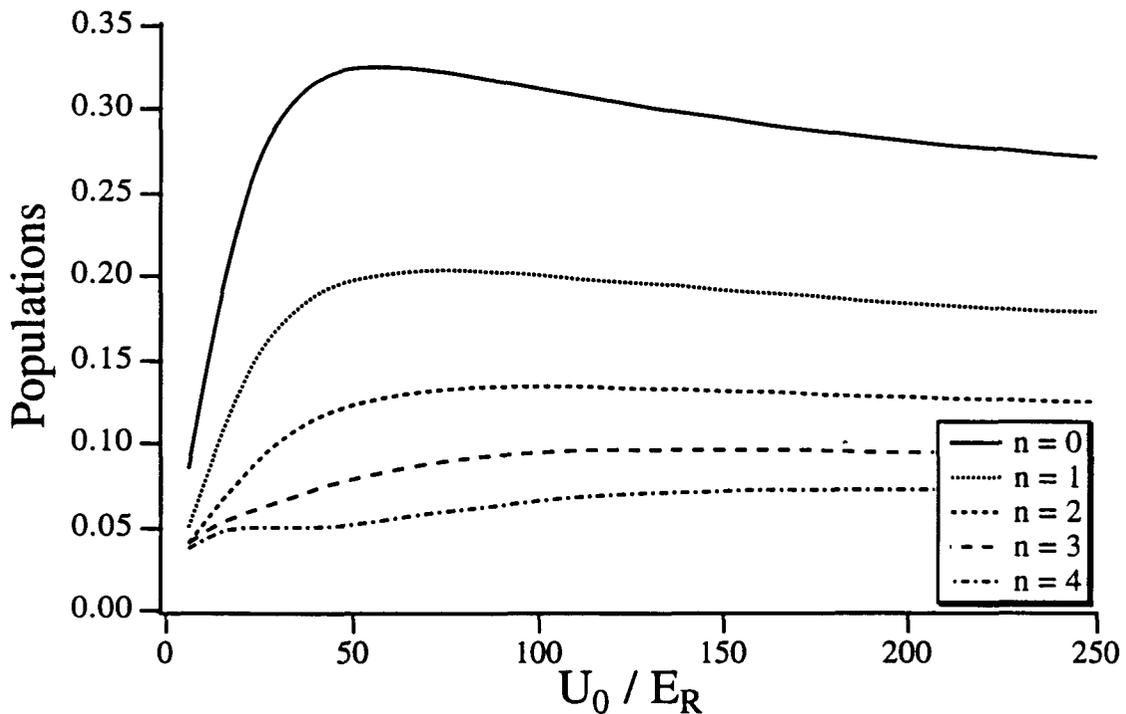


FIG. III.3-2 : Dépendance des populations des cinq premiers niveaux de vibration (d'indice n variant de 0 à 4) dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, en fonction du paramètre sans dimension U_0/E_R . Le calcul a été effectué en tenant compte des 40 premiers états de bandes, pour deux indices de Bloch, et en calculant les fonctions d'onde par troncature dans l'espace des impulsions de $-50 \hbar k$ à $+50 \hbar k$.

La mélasse lin_Llin possède donc une structure spatialement ordonnée, de type cristallin, caractérisée par une forte modulation spatiale de période $\lambda/4$ de la densité atomique totale $\rho_{\text{tot}}^{(0)}$, que l'on peut définir au moyen de la distribution de densité $\rho_-^{(0)}$ associée au seul sous-niveau Zeeman $|g,-\rangle$:

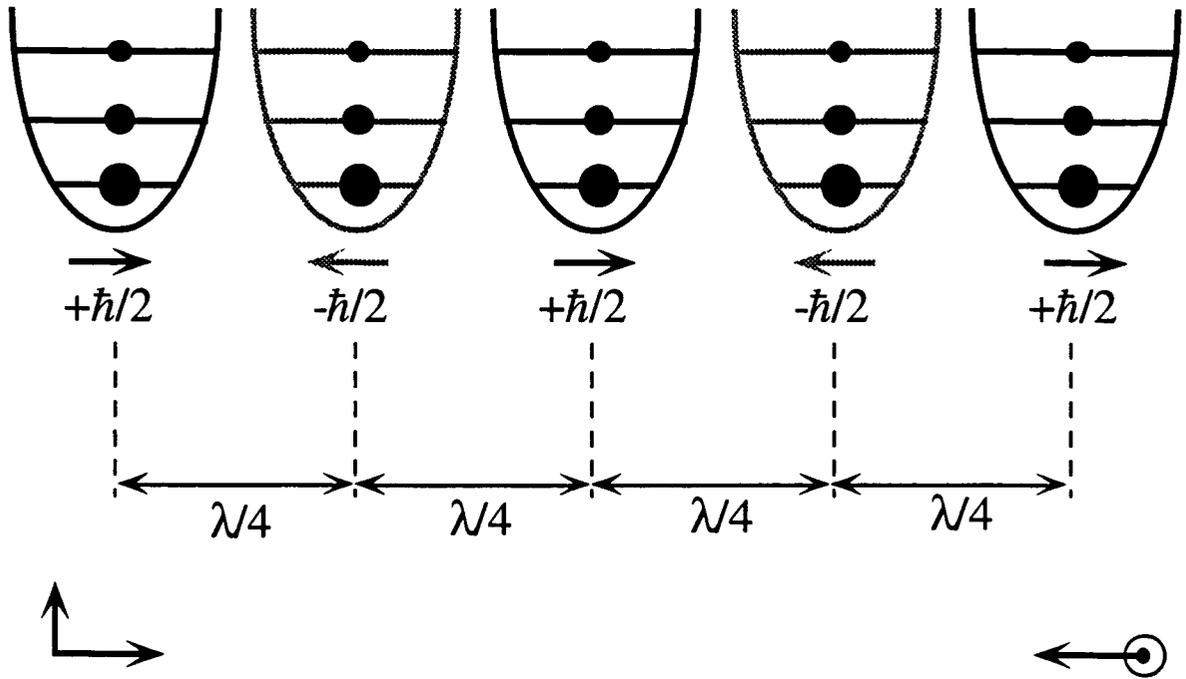


FIG. III.3-3 : Ordre anti-ferromagnétique d'une mélasse lin⊥lin. Du fait de la forte localisation des atomes au fond des puits de potentiel associés alternativement aux sous-niveaux Zeeman de nombre quantique magnétique +1/2 et -1/2, la mélasse optique présente un ordre cristallin à grande distance de type anti-ferromagnétique, l'orientation des atomes de la mélasse (représentée par des flèches), d'ordre $\hbar/2$, changeant de signe tous les $\lambda/4$.

$$\rho_{-}^{(0)}(z) = \sum_{n,q} \pi_{n,q,-}^{(0)} |\langle z | n, q, - \rangle|^2 \tag{III.3-11}$$

par la relation [Rq.III-7] :

$$\rho_{\text{tot}}^{(0)}(z) = \rho_{-}^{(0)}(z) + \rho_{-}^{(0)}(z + \lambda/4) \tag{III.3-12}$$

De plus, deux puits adjacents du potentiel lumineux étant associés à des sous-niveaux Zeeman de moment magnétique opposés, la mélasse présente une grande analogie avec un milieu anti-ferromagnétique (Fig. III.3-3). En effet, les atomes localisés dans les puits de potentiel centrés en $z = 0, z = \lambda/2, \dots$ ont un moment magnétique pointant dans la direction $-z$, alors que ceux localisés dans les puits centrés en $z = \lambda/4, z = 3\lambda/4, \dots$ ont un moment magnétique pointant dans la direction opposée. Cette propriété est caractérisée par le fait que la densité totale d'orientation $M_{\text{tot}}^{(0)}$ de la mélasse [Rq.III-8] :

[Rq.III-7] On utilise l'invariance de la mélasse par translation de $\lambda/4$ et échange de sous-niveau Zeeman.

[Rq.III-8] La notation M a été choisie pour faire référence au Moment Magnétique des atomes de la mélasse.

$$M_{\text{tot}}^{(0)}(z) = \frac{\hbar}{2} [\rho_{-}^{(0)}(z + \lambda/4) - \rho_{-}^{(0)}(z)] \quad (\text{III.3-13})$$

change de signe tous les $\lambda/4$ [Rq.III-9].

4. Résultats expérimentaux [Lou93c]

Nous rappelons dans ce paragraphe le principe de mesure et les caractéristiques des spectres de transmission obtenus expérimentalement dans une mélasse optique 1D lin⊥lin d'atomes de césium (transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$) [Rq.III-10]. Une des principales difficultés des expériences de spectroscopie pompe-sonde unidimensionnelles provient de l'impossibilité de piéger durablement des atomes dans une seule direction d'espace. En effet, en raison des processus d'absorption-émission spontanée subis par les atomes, ceux-ci vont rapidement acquérir une vitesse importante dans les autres directions, et s'échapper de la zone de recouvrement des faisceaux lasers, entraînant une chute rapide de la densité atomique, et donc du signal de transmission de l'onde sonde. La technique retenue pour réaliser ces expériences est la suivante. Un nuage d'environ 10^8 atomes de césium refroidis est préparé à l'aide d'un piège magnéto-optique par une phase de chargement et de ralentissement durant environ 1 s. Le champ magnétique inhomogène du piège est alors coupé, et l'intensité des faisceaux de piégeage réduite à une valeur très faible (typiquement 0-0.1 mW/cm²). Le nuage d'atomes froids est alors soumis à l'action d'un champ pompe résultant de la superposition de deux ondes pompes d'intensité de l'ordre de 5 mW/cm², se propageant en sens opposés, et ayant des polarisation linéaires orthogonales. On parvient ainsi à réaliser de manière transitoire une mélasse optique 1D lin⊥lin (la durée de vie de cette mélasse étant de l'ordre de 10 ms). Simultanément, une onde sonde progressive de faible intensité (environ 0.05 mW/cm²) et de polarisation ajustable est dirigée sur la mélasse optique, avec un angle d'environ 3° par rapport aux ondes pompes, et sa fréquence est balayée autour de la fréquence du champ pompe. Le spectre de transmission de l'onde sonde est alors obtenu en enregistrant l'intensité sonde transmise à travers la mélasse au moyen d'une photodiode (Fig. III.4-1).

[Rq.III-9] Notons que la mélasse de type MASE considéré dans [Lou93a] correspond à un ordre ferromagnétique.

[Lou93c] B. Lounis, thèse de doctorat, Université Paris XI, Paris (1993).

[Rq.III-10] Pour plus de détails concernant les résultats expérimentaux, voir les Réfs [Lou93c] et [Ver92] (jointe en annexe C.III).

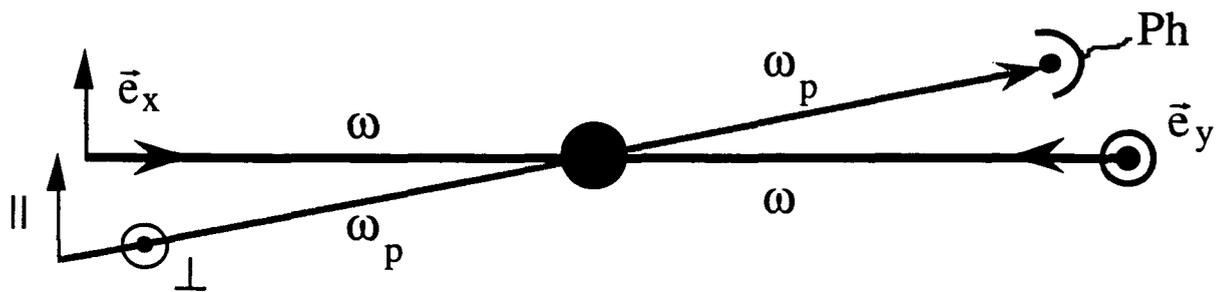


FIG. III.4-1 : Schéma d'une expérience de spectroscopie non linéaire pompe-sonde dans une mélasse 1D lin⊥lin. Deux faisceaux lasers de refroidissement de fréquence ω et de polarisations linéaires orthogonales se propagent en sens opposés à travers un nuage d'atomes froids issu d'un piège magnéto-optique, réalisant ainsi une mélasse optique 1D lin⊥lin de manière transitoire. Un faisceau sonde de faible intensité et de fréquence variable $\omega_p \approx \omega$ est également envoyé à travers le milieu atomique. Le spectre de transmission est obtenu par mesure, à l'aide d'une photodiode Ph, de l'intensité de la sonde transmise en fonction de ω_p . Il est étudié pour deux configurations de polarisation linéaire de l'onde sonde, selon que celle-ci est parallèle (||) ou orthogonale (\perp) à la polarisation du faisceau pompe se propageant dans la même direction que l'onde sonde. L'angle entre les ondes sonde et pompes, de l'ordre de 3° , a été exagéré ici pour la clarté de la figure.

Les spectres de transmission sont étudiés pour deux géométries de polarisation linéaire du faisceau sonde. Nous y ferons référence par la suite sous l'appellation de configurations de polarisation || ou \perp , selon que cette polarisation est parallèle ou orthogonale à celle de l'onde pompe se propageant dans la même direction que la sonde (Fig. III.4-1). Nous avons représenté sur la Fig. III.4-2 les spectres de transmission pour ces deux configurations de polarisation, et rassemblé l'ensemble des paramètres caractéristiques de l'expérience dans le Tableau III.4-1. La comparaison des Figs III.4-2(a) (cas ||) et III.4-2(b) (cas \perp) fait apparaître tout à la fois des analogies et des différences importantes. On constate en effet que :

- Quelle que soit la configuration de polarisation, le spectre de transmission de la sonde présente des résonances latérales en amplification et en absorption centrées en $\delta \approx \pm\Omega_v$. Nous montrerons que ces résonances correspondent à des processus Raman stimulés entre niveaux vibrationnels. Leur demi-largeur, de l'ordre de 25 kHz, est très inférieure au taux de diffusion de la lumière $\Gamma' \approx 130$ kHz. On devine également la présence des premières harmoniques associées aux transitions Raman entre états de vibrations non immédiatement voisins [Rq.III-11]. Les harmoniques ne sont toutefois pas exactement centrées en $\delta \approx \pm 2 \Omega_v$ (170 kHz au lieu de 180 kHz). Nous interpréterons ces différentes caractéristiques aux §III.5 et §III.6.
- Les spectres de transmission présentent également une structure centrale de largeur très faible devant Γ' , et dont la forme dépend très fortement de la configuration de polarisation

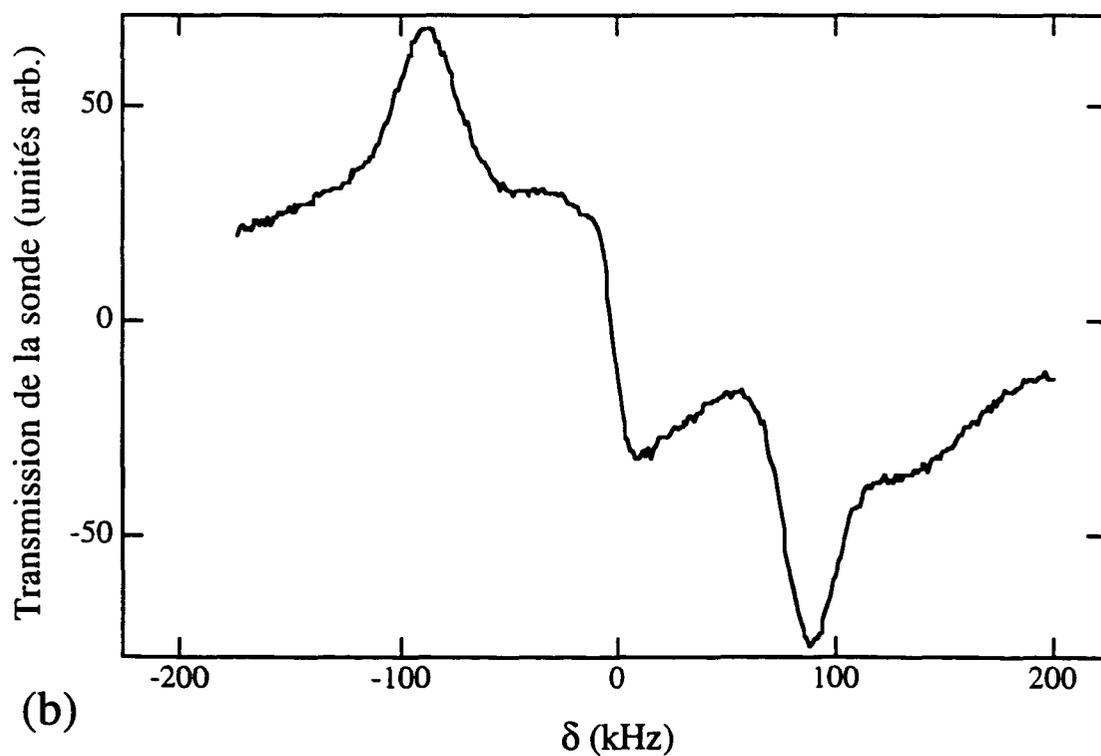
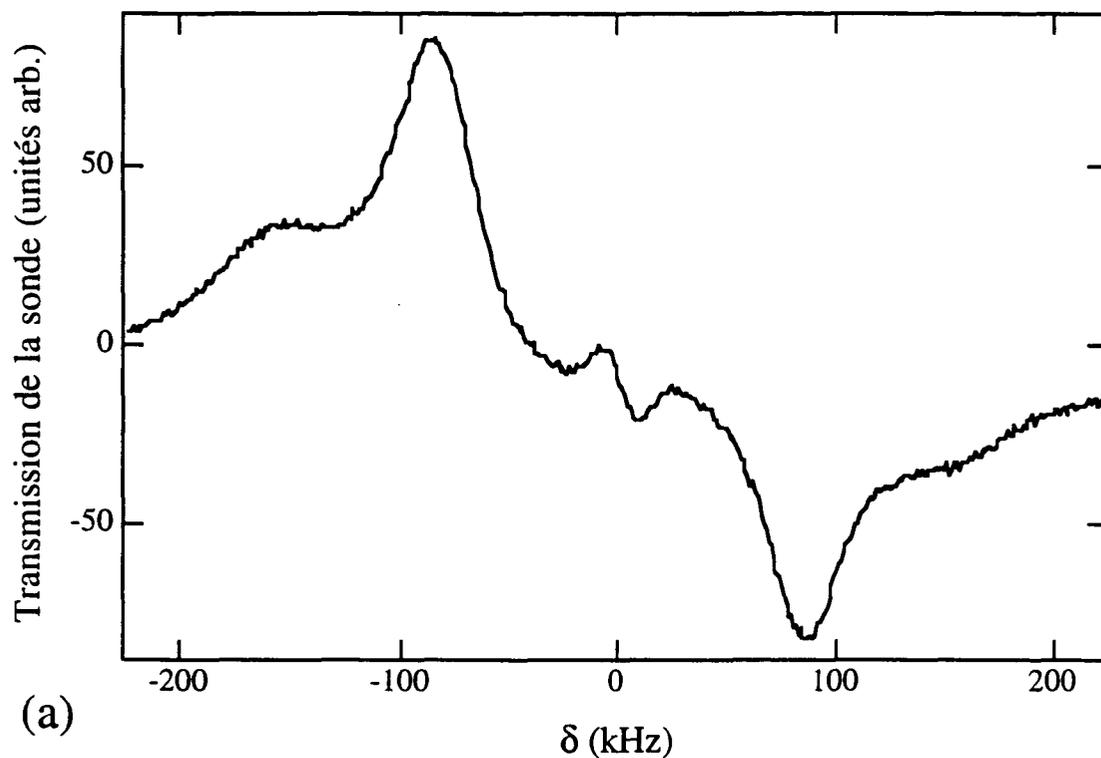
[Rq.III-11] La présence d'harmoniques est beaucoup plus évidente dans le cas analogue d'une mélasse de type MASE. Voir pour plus de détails l'article [Lou93a] joint en annexe D.III.

de l'onde sonde. Dans le cas || (Fig. III.4-2(a)), elle apparaît comme une résonance d'allure dispersive de très faible largeur, tandis que dans le cas \perp (Fig. III.4-2(b)), elle prend une forme de falaise comportant une pente très abrupte (de largeur comparable à celle de la dispersion centrale de la Fig. III.4-2(a)) ainsi que des ailes plus larges. Notons que la structure centrale de la Fig. III.4-2(a) a une amplitude sensiblement plus faible que celle de la Fig. III.4-2(b)). Comme nous le montrerons au §III.7, les processus Rayleigh stimulés impliquant des modifications de population des niveaux vibrationnels par l'onde sonde sont impliqués dans ces résonances.

$E_R \approx 2 \text{ kHz}$	Energie de recul de l'atome de césium (en unités de fréquence)
$\Gamma \approx 5.3 \text{ MHz}$	Largeur naturelle du niveau excité
$\Delta \approx -7 \Gamma$	Désaccord à résonance des ondes pompes
$I_0 \approx 5 \text{ mW/cm}^2$	Intensité des lasers pompes (correspondant à une fréquence de Rabi résonnante $\Omega \approx 1.5 \Gamma$)
$s_0 \approx 1/40$	Paramètre de saturation de la transition atomique par une onde pompe
$\Gamma' = \Gamma s_0 \approx 130 \text{ kHz}$	Taux caractéristique de diffusion de la lumière par les atomes
$\Omega_v \approx 90 \text{ kHz}$	Fréquence d'oscillation des atomes au fond des puits de potentiel (estimation théorique)

Tableau III.4-1 : Paramètres expérimentaux caractéristiques des spectres de la Fig. III.4-1.

FIG. III.4-2 : Spectres de transmission expérimentaux obtenus pour un désaccord à résonance $\Delta = -7\Gamma$, et une intensité pompe $I_0 = 5 \text{ mW/cm}^2$. (a) Configuration de polarisation ||. (b) Configuration de polarisation \perp . Les deux spectres de transmission présentent des résonances en absorption et en amplification centrées en $\delta \approx \pm 90 \text{ kHz}$, associées à des transitions Raman stimulées entre niveaux atomiques vibrationnels voisins. Des résonances similaires centrées en $\delta \approx \pm 170 \text{ kHz}$ peuvent également être distinguées sur les spectres. Elles correspondent aux premiers overtones, associés aux transitions Raman stimulées entre niveaux de vibration non immédiatement voisins. Les spectres présentent également une structure centrale dont la forme est très sensible à la polarisation de l'onde sonde. Elle possède ainsi une forme dispersive dans le cas (a), et une structure de falaise dans le cas (b).



5. Influence de la localisation atomique sur les propriétés dynamiques de la mélasse

Les spectres de transmission expérimentaux du §III.4 montrent des résonances très étroites indiquant l'existence de taux de relaxation sensiblement plus petits que le taux de diffusion des photons lasers Γ' . Ce résultat est *a priori* très surprenant, puisque l'on s'attend à ce qu'aussi bien les populations des niveaux vibrationnels que les cohérences entre différentes bandes s'amortissent sous l'effet des cycles d'absorption-émission spontanée, et donc avec le taux Γ' . Afin d'expliquer l'origine de ces résonances étroites, nous commençons par donner ici une estimation qualitative des taux de relaxation de certaines observables atomiques. Plus précisément, nous montrons que la localisation atomique est responsable d'un allongement considérable de la durée de vie des populations et des cohérences des niveaux vibrationnels.

Nous avons introduit au paragraphe précédent les états de Bloch totalement délocalisés $|n, q, \mu\rangle$, qui se révèlent très commodes pour la description théorique complète des mélasses lin-lin, car eux seuls sont parfaitement adaptés aux propriétés de symétrie du système. Toutefois, de tels états ne correspondent pas à l'idée intuitive d'un atome bien localisé au fond d'un puits de potentiel donné. Pour de tels atomes, il est en fait plus adapté d'utiliser les fonctions de Wannier, d'emploi courant en physique du solide dans le cadre de l'approximation des liaisons fortes, et qui s'obtiennent par combinaison linéaire appropriée des fonctions de Bloch $|n, q\rangle$ de la bande n considérée. En effet, dans le cas de puits de potentiel suffisamment profonds, et pour les bandes d'énergies les plus basses, la fonction de Wannier possède une extension spatiale petite devant $\lambda/2$, et décrite en très bonne approximation l'état d'un atome localisé au fond d'un seul puits de potentiel. Dans ce régime de forte localisation, appelé régime Lamb-Dicke, le potentiel $U_{-}^{(0)}(z)$ peut être approximé au voisinage de $z=0$ par le potentiel harmonique (III.3-4) (Fig. III.5-1). La fonction de Wannier et l'énergie des bandes les plus basses sont alors données en bonne approximation par les fonctions et énergies propres d'un oscillateur harmonique de fréquence angulaire Ω_v . L'extension spatiale Δz des fonctions propres de l'oscillateur harmonique étant de l'ordre de $\sqrt{\hbar/M\Omega_v}$, le petit paramètre sans dimension caractérisant le régime Lamb-Dicke est :

$$k \Delta z \approx \left(\frac{E_R}{U_0} \right)^{\frac{1}{4}} \approx \left(\frac{E_R}{\hbar \Omega_v} \right)^{\frac{1}{2}} \ll 1 \quad (\text{III.5-1})$$

Dans ce régime, on se fixera comme limite d'utilisation des fonctions de Wannier à la place des fonctions de Bloch, que le taux de transition par effet tunnel à travers la barrière de potentiel demeure petit devant le taux de relaxation des états de Bloch par processus d'absorption-émission spontanée [Rq.III-12].

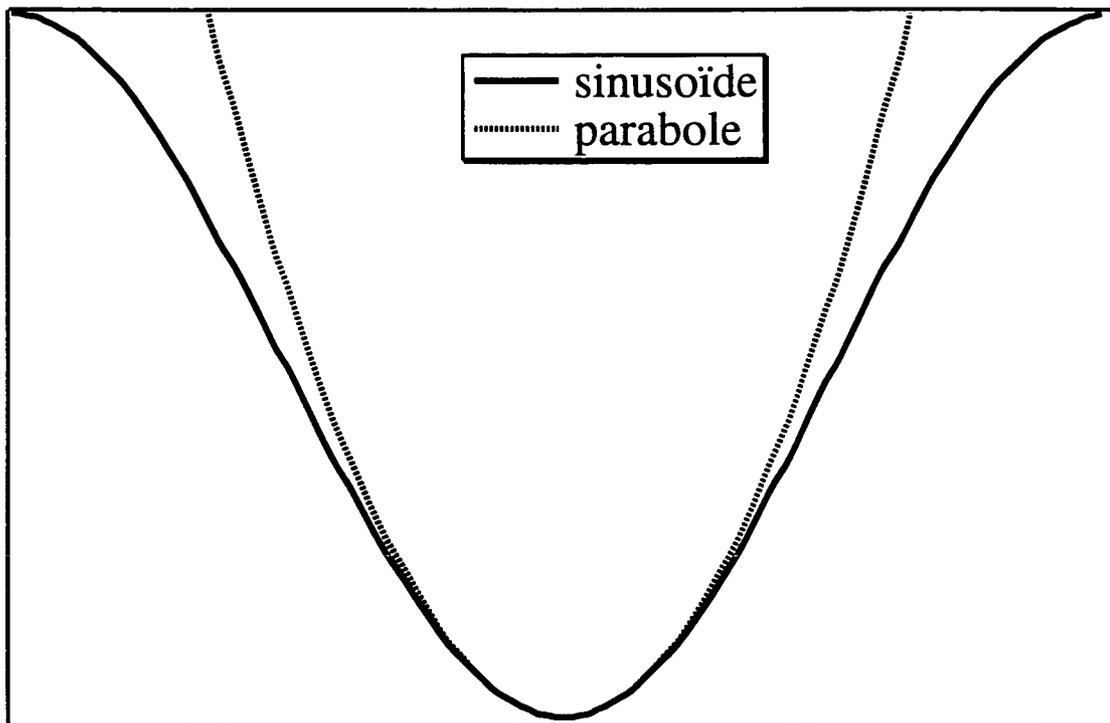


FIG. III.5-1 : Comparaison entre potentiel harmonique et sinusoïdal. On constate que l'approximation du potentiel lumineux sinusoïdal par un potentiel parabolique est satisfaisante au fond des puits de potentiel. Ainsi, dans le régime Lamb-Dicke, il est légitime de remplacer les fonctions de Wannier des bandes les plus basses par les fonctions propres d'un oscillateur harmonique. L'anharmonicité du potentiel sinusoïdal, plus évasé que le potentiel harmonique, se traduira par un rapprochement des niveaux de vibration vers le haut du potentiel (voir Fig. III.3-1).

Considérons un atome d'état interne $|g, -\rangle$, bien localisé au fond d'un puits du potentiel $U_-^{(0)}$ où le champ de refroidissement est polarisé σ^- . En ce point, l'interaction de l'atome avec le champ laser consiste essentiellement en l'absorption de photons faisant passer l'atome de l'état $|g, -\rangle$ à l'état $|e, -3/2\rangle$, d'où il ne peut retomber que vers le sous-niveau $|g, -\rangle$ (car le coefficient de Clebsch-Gordan de la transition est égal à 1). La probabilité qu'à l'atome d'être pompé optiquement du potentiel $U_-^{(0)}$ vers un état de bande de $U_+^{(0)}$ est petite, car elle dépend de l'intensité de la composante σ^+ du champ vue par l'atome sur l'étendue spatiale de sa fonction d'onde, et qui est très faible. De plus, la probabilité d'effectuer une transition vers un autre état d'énergie du

[Rq.III-12] Par contre, l'approximation des fonctions de Wannier par les fonctions propres d'un oscillateur harmonique fait l'objet d'une condition plus restrictive, à cause de l'anharmonicité du potentiel lumineux (Fig. III.5-1).

même puits de potentiel $U_-^{(0)}$ est réduite par effet Lamb-Dicke, comme dans le cas des ions piégés [Win79]. Plus précisément, le transfert d'impulsion ($\approx \hbar k$) au cours du processus de diffusion est petit devant la largeur dans l'espace des impulsions de la fonction d'onde vibrationnelle de départ ($\approx \sqrt{\hbar M \Omega_v}$), car $E_R \ll \hbar \Omega_v$ (voir Eq. (III.5-1)). L'état atomique à l'issue du processus de diffusion possède donc seulement un faible recouvrement avec les autres fonctions d'onde vibrationnelles, et a donc une probabilité proche de 1 de coïncider avec l'état initial. La durée de vie des atomes dans les niveaux d'énergie les plus bas est donc considérablement allongée car de nombreux cycles d'absorption-émission spontanée sont nécessaires pour induire un transfert vers d'autres niveaux. De la même façon, les cohérences entre deux niveaux vibrationnels au fond des puits de potentiel ne seront détruites qu'après plusieurs cycles d'absorption-émission spontanée.

Dans le régime Lamb-Dicke où les fonctions d'onde des états de plus basse énergie peuvent être approximées par celles d'un oscillateur harmonique, il est possible de donner une estimation de ces taux de relaxation. Nous considérons tout d'abord le taux de transition de l'état $|g, -\rangle \otimes |\phi_n\rangle$ (où $|\phi_n\rangle$ est l'état propre de l'oscillateur harmonique centré en $z = 0$, d'énergie $(n + 1/2)\hbar\Omega_v$) vers un état quelconque $|g, +\rangle$. La dépendance spatiale $\bar{\xi}$ du champ de refroidissement étant :

$$\bar{\xi}(z) = \sqrt{2} [\cos(kz)\bar{e}_{-1} - i \sin(kz)\bar{e}_{+1}] \quad (\text{III.5-2})$$

(où \bar{e}_{-1} et \bar{e}_{+1} correspondent respectivement aux polarisations circulaires σ^- et σ^+), le taux de transfert moyen de $|g, -\rangle \otimes |\phi_n\rangle$ vers $|g, +\rangle$ est :

$$\Gamma_n^{-\rightarrow+} = \gamma_0 \langle \phi_n | \sin^2(kZ) | \phi_n \rangle \quad (\text{III.5-3})$$

qui implique l'intensité moyenne de la composante σ^+ de la lumière sur l'étendue spatiale de la fonction d'onde atomique. Pour les états les plus profonds, on peut utiliser le développement $\sin^2(kZ) \approx k^2 Z^2$ qui permet, en utilisant la valeur moyenne $\langle \phi_n | k^2 Z^2 | \phi_n \rangle$ bien connue dans le cas d'un oscillateur harmonique ($\langle \phi_n | k^2 Z^2 | \phi_n \rangle = (n + 1/2)\hbar k^2 / M\Omega_v$), d'obtenir :

$$\Gamma_n^{-\rightarrow+} = \gamma_0 \left(n + \frac{1}{2} \right) \sqrt{\frac{E_R}{U_0}} \quad (\text{III.5-4})$$

Nous considérons à présent le taux de transition de l'état $|g, -\rangle \otimes |\phi_n\rangle$ vers un autre état $|g, -\rangle \otimes |\phi_m\rangle$ du même puits de potentiel. Ce taux s'exprime sous la forme :

$$\Gamma_{n \rightarrow m}^{\rightarrow \rightarrow} = \Gamma \left[\overline{|\langle \phi_n | \cos(kZ) e^{i\kappa Z} | \phi_m \rangle|^2} + \frac{1}{3} \overline{|\langle \phi_n | \sin(kZ) e^{i\kappa Z} | \phi_m \rangle|^2} \right] \quad (\text{III.5-5})$$

où κ désigne la projection du vecteur d'onde du photon spontané sur l'axe Oz, et où le signe $\overline{(\quad)}$ décrit la valeur moyenne prise sur la direction d'émission du photon spontané. Le premier terme contribuant à ce taux correspond à l'absorption d'un photon σ^- suivie de l'émission d'un photon σ^- , tandis que le second terme est associé aux processus où deux photons σ^+ sont impliqués. Le facteur 1/3 apparaissant dans le second terme est le carré du coefficient de Clebsch-Gordan correspondant à la transition reliant $|g, -\rangle$ à $|e, +1/2\rangle$.

Le taux de transfert vers un niveau de bande $n \neq m$ quelconque s'obtient alors immédiatement par sommation de (III.5-5), et utilisation de la relation de fermeture. On trouve alors [Rq.III-13] :

$$\Gamma_n^{\rightarrow \rightarrow} = \Gamma \left[\overline{\langle \phi_n | \cos^2(kZ) + \frac{1}{9} \sin^2(kZ) | \phi_n \rangle} - \overline{|\langle \phi_n | \cos(kZ) e^{i\kappa Z} | \phi_n \rangle|^2} - \frac{1}{3} \overline{|\langle \phi_n | \sin(kZ) e^{i\kappa Z} | \phi_n \rangle|^2} \right] \quad (\text{III.5-6})$$

Afin d'obtenir une estimation simple de $\Gamma_n^{\rightarrow \rightarrow}$, on supposera que les photons spontanés sont émis soit le long de l'axe Oz (dans les directions $+z$ et $-z$), soit orthogonalement à cet axe, le poids des différents processus étant déduit du diagramme d'émission spontané (voir §R.3.2). En développant les quantités $\cos(kZ)$, $\sin(kZ)$ et $e^{i\kappa Z}$ et leurs produits jusqu'à l'ordre 2 en le petit paramètre kZ , on déduit de l'Eq. (III.5-6) l'expression suivante :

$$\Gamma_n^{\rightarrow \rightarrow} = \frac{11}{18} \Gamma \left(n + \frac{1}{2} \right) \sqrt{\frac{E_R}{U_0}} \quad (\text{III.5-7})$$

En sommant (III.5-4) et (III.5-7), on trouve alors que le taux de départ effectif Γ_n^{eff} du niveau $|g, -\rangle \otimes |\phi_n\rangle$ est donné en bonne approximation par :

$$\Gamma_n^{\text{eff}} = \frac{5}{6} \Gamma \left(n + \frac{1}{2} \right) \sqrt{\frac{E_R}{U_0}} \quad (\text{III.5-8})$$

ou, en utilisant $\sqrt{U_0/E_R} = \hbar\Omega_v/2E_R$:

$$\Gamma_n^{\text{eff}} = \frac{5}{6} \Gamma (2n+1) \frac{E_R}{\hbar\Omega_v} \quad (\text{III.5-9})$$

[Rq.III-13] Notons qu'à l'ordre 1 en le petit paramètre $k\Delta z$ caractérisant le régime Lamb-Dicke, le niveau de vibration n n'est couplé par absorption-émission spontanée qu'aux niveaux $n-1$ et $n+1$.

Pour les niveaux vibrationnels de plus basse énergie, ce taux est donc plus petit que le taux de diffusion des photons Γ' par un facteur de l'ordre de $\sqrt{E_R/U_0}$. Expérimentalement, on atteint couramment des valeurs de U_0/E_R de l'ordre de 1000. Dans ce cas, la durée de vie effective de la première bande est donc allongée d'environ un facteur 30. L'atome diffusant les photons avec le taux Γ' , cela signifie que près de 95% des photons diffusés sont associés à un processus de diffusion élastique [Jes92]. Nous avons comparé sur la Fig. III.5-2 l'estimation (III.5-9) au taux de relaxation effectif des populations des niveaux de vibration $n=0, 1, 2$ issu du calcul numérique rigoureux. Comme attendu, on y constate un très bon accord quantitatif à la limite des puits de potentiel profonds, et pour les niveaux de vibration les plus bas.

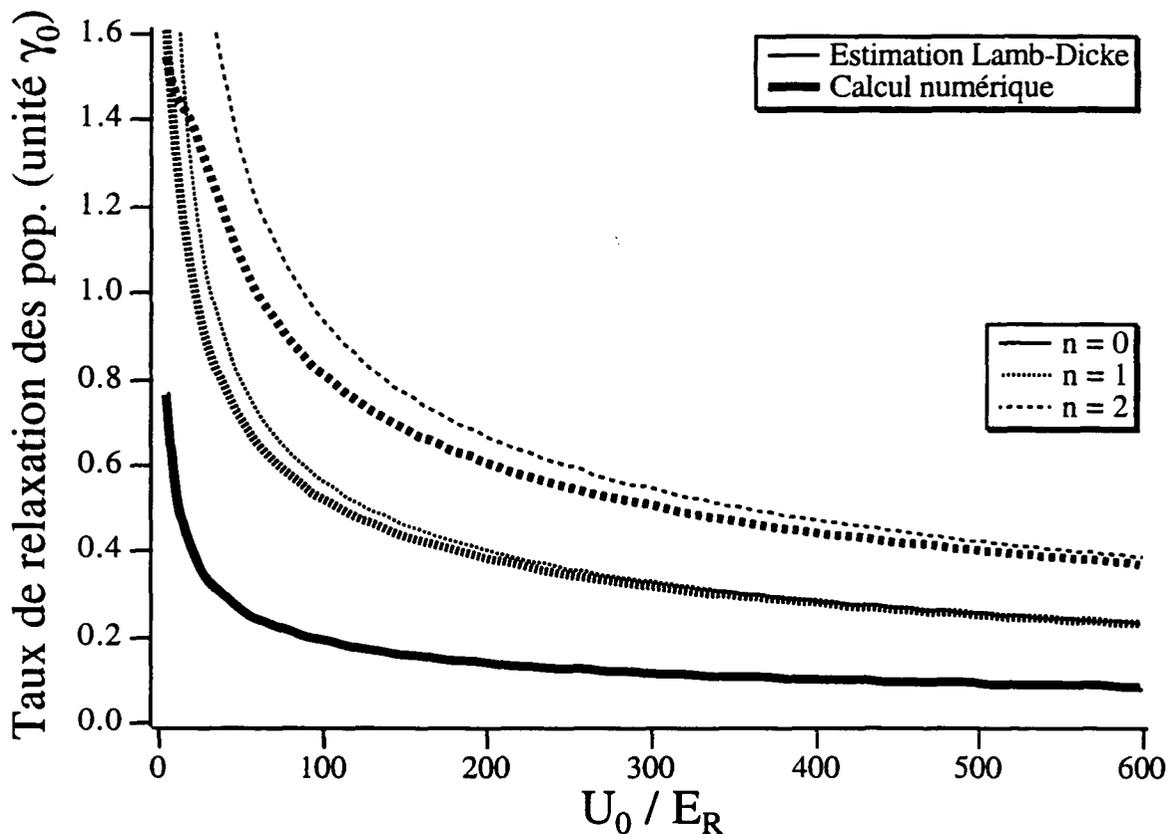


FIG. III.5-2 : Comparaison des taux de relaxation des populations obtenus par l'approximation Lamb-Dicke, et par le calcul numérique exact. Comme attendu, l'approximation est satisfaisante pour les niveaux les plus bas et pour les puits profonds (et même excellente pour le niveau fondamental, les deux courbes étant confondues à l'échelle de la figure). Le calcul numérique a été effectué en supposant les photons spontanés émis le long de l'axe Oz, ou orthogonalement à celui-ci. Pour le calcul des fonctions d'onde, l'espace des impulsions a été restreint de $-90 \hbar k$ à $+90 \hbar k$.

[Jes92] Le spectre de fluorescence d'une mélasse 1D lin-lin a été étudié au NIST (USA). Il montre effectivement que la diffusion Rayleigh est le processus dominant dans une telle mélasse. P. S. Jessen, C. Gerz, P. D. Lett, W. D. Phillips, S. L. Rolston, R. J. C. Spreeuw, et C. I. Westbrook, Phys. Rev. Lett. **69**, 49 (1992).

Il est possible de donner par la même méthode une estimation du taux de relaxation effectif Γ_{nm}^{eff} des cohérences σ_{nm} entre niveaux de vibration n et m localisés au fond des puits de potentiel. On trouve ainsi :

$$\Gamma_{nm}^{\text{eff}} = \frac{5}{6} \Gamma \left(\frac{n+m+1}{2} \right) \sqrt{\frac{E_R}{U_0}} \quad (\text{III.5-10})$$

ou encore :

$$\Gamma_{nm}^{\text{eff}} \approx \frac{5}{6} \Gamma (n+m+1) \frac{E_R}{\hbar \Omega_v} \quad (\text{III.5-11})$$

qui n'est autre que la demi-somme des taux de relaxation des populations des niveaux impliqués. Il est possible de donner une image semi-classique de l'allongement de la durée de vie des cohérences. Le processus de relaxation décrit en effet la rapidité avec laquelle la phase de l'oscillation des atomes au fond des puits de potentiel est modifiée sous l'action des cycles d'absorption-émission spontanée. En fait, à l'issue de ces cycles, l'atome retourne essentiellement dans le puits de potentiel qu'il vient de quitter (le coefficient de Clebsch-Gordan de la transition entre les états $|g, -\rangle$ et $|e, -3/2\rangle$ étant égal à 1), avec seulement un petit changement d'impulsion. Si ce changement reste faible devant l'impulsion quadratique moyenne, le mouvement atomique n'est que peu perturbé, de telle sorte que de nombreux cycles d'absorption-émission spontanée sont nécessaires pour que le mouvement oscillatoire de l'atome soit interrompu par pompage optique, ou qu'il perde sa mémoire de phase.

Nous avons finalement montré que la *localisation atomique* au fond de puits de potentiel où la lumière est *purement circulaire* était responsable d'un phénomène d'allongement considérable des temps de relaxation T_1 et T_2 . On peut ainsi se demander s'il n'y a pas lieu de nuancer quelque peu la séparation entre régimes "oscillant" et "sautant" [Cas91b]. Il semble ainsi raisonnable de considérer que le système est dans le régime oscillant pour l'état $|n\rangle$ si $\Omega_v \gg \Gamma_n^{\text{eff}}$ (l'atome oscille en effet de nombreuses fois au fond des puits de potentiel avant de quitter l'état $|n\rangle$) même lorsque $\Omega_v \ll \Gamma$ (les expériences de [Ver92] ont été en fait réalisées dans ces conditions). On se trouve alors dans une situation de régime oscillant au voisinage du fond des puits de potentiel, et de régime sautant ailleurs.

6. Spectroscopie Raman de la mélasse optique

Nous abordons à présent l'étude des spectres de transmission d'une onde sonde à travers la mélasse optique, en débutant par le cas des résonances Raman stimulées entre niveaux de vibration quantifiés des atomes au fond des puits du potentiel lumineux. Nous montrons dans ce paragraphe que conformément aux résultats expérimentaux du §III.4, et à l'estimation des taux de relaxation des cohérences entre niveaux vibrationnels donnée au paragraphe précédent, la localisation atomique est responsable d'un affinement des raies Raman par rapport au taux de diffusion total Γ' des photons. Nous mettons également en évidence la complexité de la structure des différentes résonances résultant de la contribution de nombreux couples de niveaux vibrationnels, et nous discutons le rôle de l'anharmonicité du potentiel lumineux sinusoïdal sur la forme et la position des harmoniques associées aux transitions Raman stimulées entre niveaux de vibration non voisins.

Le calcul du spectre Raman d'une mélasse lin.Llin présente plusieurs difficultés par rapport à la situation considérée au chapitre I, où il était possible d'isoler un seul couple de niveaux d'énergie participant simultanément à l'effet Raman stimulé. En effet, du fait de l'harmonicité approchée du potentiel lumineux, le spectre d'énergie de la mélasse présente une multitude d'états séparés d'une même quantité ($\approx \hbar\Omega_v$), susceptibles de donner simultanément lieu à des processus Raman stimulés (Fig. III.6-1) se manifestant sous la forme de résonances centrées au même endroit du spectre, et de largeurs différentes. De plus, l'estimation rigoureuse des largeurs des différentes contributions ne peut se faire qu'au prix d'une étude détaillée de la dynamique d'évolution des différentes cohérences entre états de vibration, couplées entre elles par interaction avec les ondes pompes, et qui doit s'effectuer par une approche modale dans l'esprit de la méthode exposée au §R.4. Les détails de cette méthode pourront être trouvés dans l'article [Cou92], joint en annexe E.III.

Nous présentons sur la Fig. III.6-2 un exemple d'un tel spectre Raman calculé dans le cas d'un potentiel lumineux de profondeur $U_0 = 100 E_R$ (correspondant au spectre d'énergie de la Fig. III.3-1), en se limitant aux transitions Raman entre niveaux de vibration $n \rightarrow n \pm 1$ (raies Raman), ainsi que $n \rightarrow n \pm 2$ (premières harmoniques).

Malgré la relative complexité du calcul rigoureux des spectres, il est possible dans le régime Lamb-Dicke d'en discuter les principales caractéristiques sur la base des considérations développées précédemment. On s'attend en effet à ce que les transitions Raman stimulées ne se produisent qu'entre les états d'énergie les plus bas où les différences de populations entre niveaux sont importantes, et qui sont seuls à être peuplés de manière significative dans l'état stationnaire. Ces niveaux étant en bonne approximation distants deux à deux d'une quantité $\hbar\Omega_v$, on s'attend à

voir sur les spectres des groupes de résonances centrées en $n \hbar \Omega_v$ (avec n entier non nul), ce qui se trouve confirmé par les résultats expérimentaux (§III.4) et théoriques (Fig. III.6-2) [Rq.III-14].

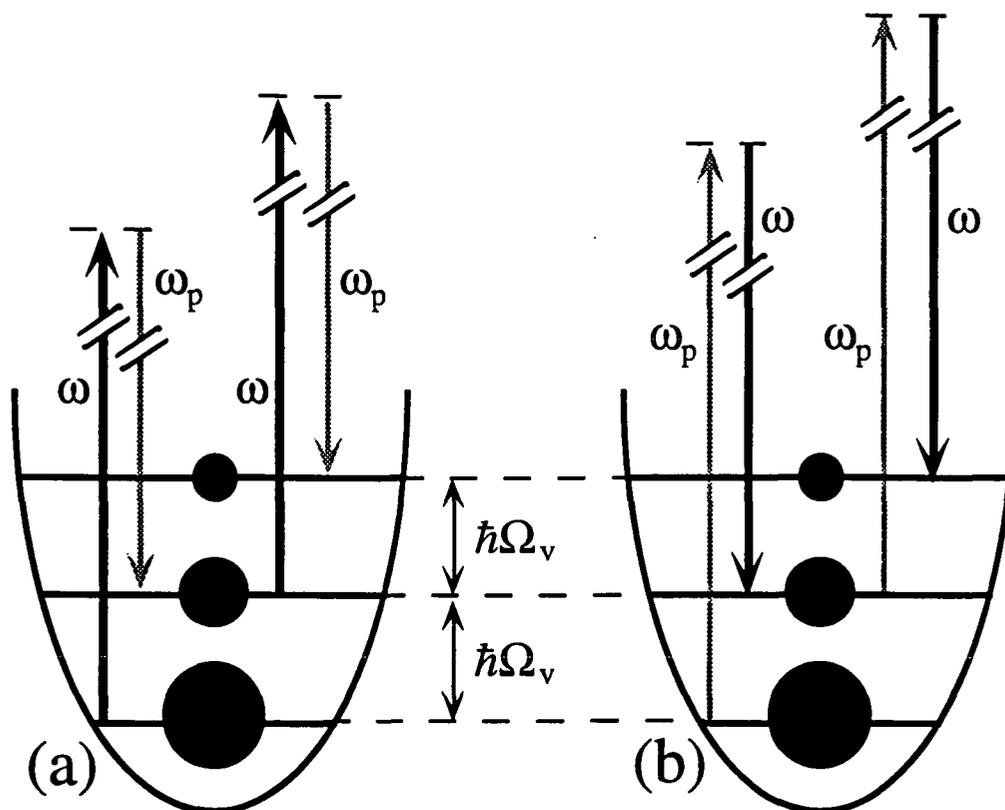


FIG. III.6-1 : Exemples de processus Raman stimulés entre niveaux atomiques vibrationnels différemment peuplés selon la valeur relative des fréquences sonde (ω_p) et pompes (ω).
 (a) Processus Raman stimulés conduisant à l'amplification de l'onde sonde ($\omega_p = \omega - \Omega_v$).
 (b) Processus Raman stimulés conduisant à l'absorption de l'onde sonde ($\omega_p = \omega + \Omega_v$).

On peut vérifier [Cou92] que la dépendance des positions des raies Raman en fonction de la profondeur du potentiel lumineux est en bon accord avec l'estimation (III.3-5), et correspond donc à une loi en $\sqrt{I_0/|\Delta|}$ (I_0 étant l'intensité des lasers pompes). D'autre part, en raison du faible couplage entre les différentes cohérences impliquant des états vibrationnels profonds (à cause de l'effet Lamb-Dicke), les modes propres d'évolution des cohérences sont associés en bonne approximation aux taux de relaxation des cohérences individuelles, données par l'expression (III.5-11). Comme montré dans [Cou92], on constate effectivement un très bon accord de la dépendance de la largeur des résonances Raman en fonction de la profondeur de potentiel, déduite de l'estimation (III.5-11), et des spectres théoriques. On se trouve donc dans une situation où la largeur des raies Raman suit une loi en $\sqrt{I_0/|\Delta|^3}$, caractéristique de l'effet

[Rq.III-14] La présence d'overtones sur les spectres expérimentaux est très nette dans le cas voisin d'une mélasse de type MASE, faisant l'objet de la Réf. [Lou93a], jointe en annexe D.III.

Lamb-Dicke [Rq.III-15]. En utilisant les résultats du chapitre I, on s'attend également à trouver, à populations des niveaux vibrationnels constantes, que l'amplitude des raies Raman suit une loi en $\sqrt{I_0/|\Delta|}$, assez bien vérifiée théoriquement à la limite des puits de potentiel profonds où les populations stationnaires des niveaux les plus bas varient relativement peu en fonction de la profondeur des puits [Rq.III-16]. Il est également intéressant de noter que la largeur des raies Raman n'est généralement pas donnée par le taux de relaxation de la cohérence σ_{01} entre les niveaux de vibration $n=0$ et $n=1$, mais qu'elle fait également intervenir les durées de vie des cohérences σ_{12} (comme dans le cas de la Fig. III.6-1) ou σ_{23} . Ceci est à nouveau lié à la localisation atomique, puisque le couplage Raman entre les niveaux de vibration est réduit par effet Lamb-Dicke pour les niveaux les plus profonds. Les états d'énergie jouant un rôle important dans les structures Raman seront donc ceux qui réaliseront le meilleur compromis entre différence de populations (plus importante pour les niveaux profonds) et couplage Raman (plus grand pour les niveaux plus excités). Notons pour conclure en ce qui concerne les raies Raman, que celles-ci présentent généralement une allure différente d'une simple lorentzienne, particulièrement à grand désaccord où l'on peut aisément distinguer différentes contributions de largeur, de poids, voire même dans le cas des puits peu profonds, de positions différentes (anharmonicité du potentiel), reflétant ainsi la complexité dynamique des cohérences, et la richesse des processus stimulés contribuant aux structures Raman.

La présence d'harmoniques associées à des transitions Raman stimulées entre états vibrationnels non immédiatement voisins, est également clairement visible sur le spectre de la Fig. III.6-1. Du point de vue expérimental, de telles structures ont également été observées (Fig. III.4-2 ou de manière plus évidente dans le cas analogue d'une mélasse 1D de type MASE [Lou93a] (voir annexe D.III)). Les harmoniques se distinguent en plusieurs points des raies Raman. Premièrement, leur amplitude relative est plus faible, et ce d'autant plus que le potentiel lumineux est plus profond, indiquant ainsi le rôle de l'effet Lamb-Dicke. Plus précisément, on peut montrer que si des termes d'ordre $k\Delta Z \approx (E_R/U_0)^{1/4}$ suffisent à induire les premières transitions Raman, ce sont des termes d'ordre au minimum $(k\Delta Z)^2$ qui induisent les transitions $n \rightarrow n \pm 2$. On s'attend donc que à ce que dans le régime Lamb-Dicke où $k\Delta Z \ll 1$, le rapport des amplitudes des harmoniques et des raies Raman décroisse lorsque U_0/E_R croît. Cet effet de réduction de la probabilité de transition Raman $n \rightarrow n \pm 2$ devient même si efficace dans le cas des

[Rq.III-15] Notons que cette loi n'a pas été observée expérimentalement. Ce désaccord pourrait être dû au fait que les expériences n'ont pas été menées dans le régime séculaire considéré ici, ainsi qu'à l'emploi d'un angle non nul entre pompes et sonde induisant un élargissement inhomogène des raies Raman (effet Doppler transverse).

[Rq.III-16] La dépendance précise de l'amplitude des raies Raman en fonction de la profondeur de puits est très délicate à estimer en raison de la dépendance complexe des populations des niveaux vibrationnels en fonction de U_0/E_R .

puits de potentiel profonds, que les harmoniques sont alors principalement dues à la contribution de niveaux vibrationnels relativement excités (pourtant plus faiblement peuplés). Or ces niveaux, qui ne peuvent être décrits de façon satisfaisant par un potentiel harmonique, sont distants de moins de $\hbar\Omega_v$, de telle sorte que la position des premières harmoniques ne correspond pas à $\pm 2\Omega_v$, mais apparaît plus proche des raies Raman, comme on peut le voir sur le spectre de la Fig. III.6-2, où l'on devine en outre la contribution de plusieurs modes dynamiques. Mentionnons que la plupart des caractéristiques des harmoniques discutées ici ont été confirmées expérimentalement [Lou93a].

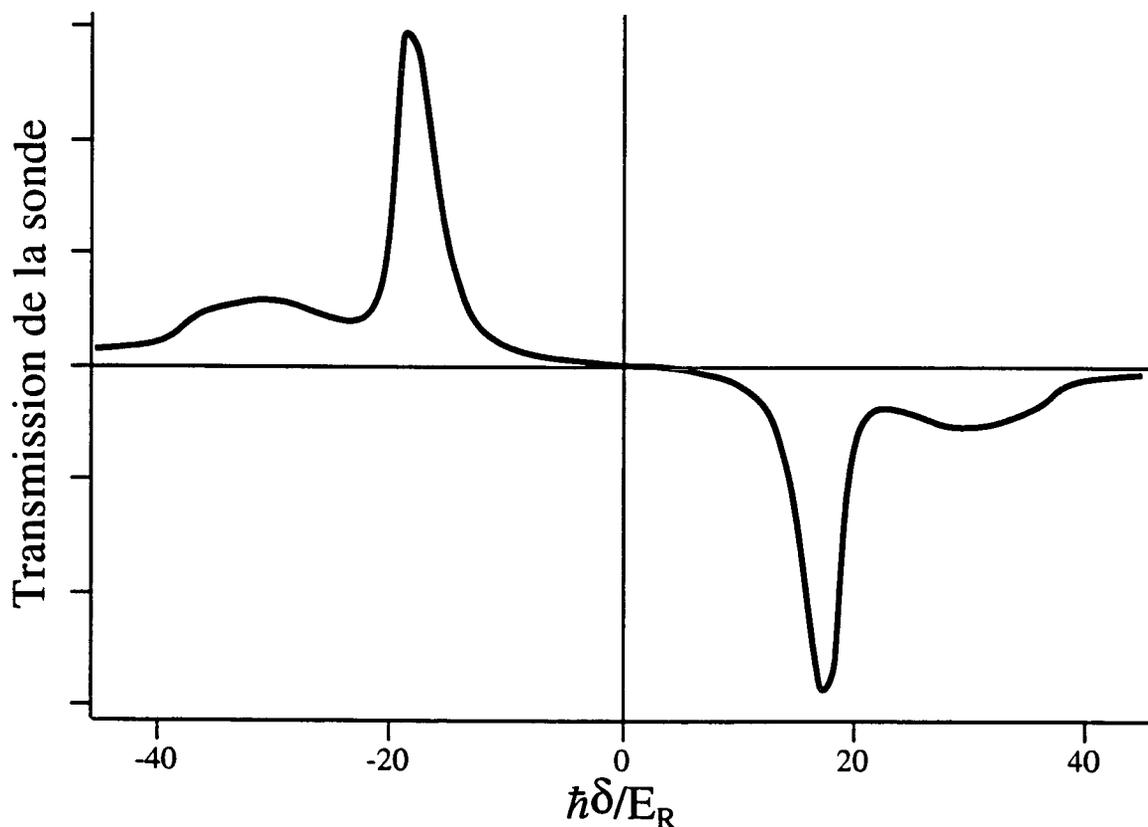


FIG. III.6-2 : Spectre Raman de transmission d'une onde sonde ayant une polarisation linéaire orthogonale à celle de l'onde pompe avec laquelle elle se copropage. La profondeur du potentiel lumineux est de $U_0 = 100 E_R$, et le désaccord à résonance des lasers est de -10Γ . Le calcul numérique a été effectué en tenant compte des 40 premiers états de bandes avec deux indices de Bloch, et en tronquant l'espace des impulsions de $-88 \hbar k$ à $+88 \hbar k$. Seules ont été représentées les résonances Raman ainsi que les premières harmoniques. Il apparaît sur ce spectre que les raies Raman ont une allure différant légèrement d'une simple lorentzienne. Elles ont une demi-largeur ($\approx 2 E_R/\hbar$) correspondant au taux de relaxation de la cohérence entre les niveaux vibrationnels $n=1$ et $n=2$ et beaucoup plus faible que $\Gamma' \approx 15 E_R/\hbar$. Elles sont centrées autour de $\Omega_v = 20 E_R/\hbar$. Les harmoniques sont moins intenses que les raies Raman, et apparaissent comme une structure très large résultant de différentes contributions. Ces caractéristiques sont dues à la contribution de niveaux vibrationnels plus excités, moins affectés par l'effet Lamb-Dicke, ainsi qu'à l'anharmonicité du potentiel sinusoïdal. Il est en outre à noter que le spectre Raman de la mélasse linéaire apparaît dans le calcul peu sensible à la polarisation de la sonde.

Insistons enfin sur le rôle fondamental joué par l'effet Lamb-Dicke dans les expériences de [Ver92]. En effet, afin d'obtenir un rapport signal sur bruit satisfaisant, ces expériences ont été effectuées à relativement faible désaccord ($\Delta \approx -3\Gamma$), et pour un paramètre de saturation de l'ordre de 0.1, ne satisfaisant pas la relation (III.3-7). Or de telles conditions rendraient impossible l'observation de transitions Raman stimulées entre niveaux de vibrations, si la largeur de ces niveaux était de l'ordre du taux de diffusion de la lumière Γ' (les largeurs des raies Raman seraient alors bien supérieures à leurs distances). L'observation de raies Raman bien résolues sur les spectres de [Ver92] est donc une preuve de l'existence d'un phénomène d'allongement considérable de la durée de vie des populations des niveaux vibrationnels, mettant en évidence la forte *localisation* des atomes au fond de puits de potentiel où la lumière est *purement circulaire*.

En conclusion à ce paragraphe, résumons les informations apportées par les résonances Raman des spectres de transmission :

L'existence des résonances Raman reflète la quantification du mouvement atomique dans les puits du potentiel lumineux.

Leur position donne accès à la fréquence d'oscillation des atomes au fond des puits de potentiel.

Leur largeur prouve la localisation des atomes à une échelle inférieure à la longueur d'onde.

La position des harmoniques montre l'anharmonicité du potentiel.

7. Spectroscopie Rayleigh de la mélasse optique

Une des caractéristiques les plus étonnantes des spectres de transmission obtenus expérimentalement dans le cas des mélasses lin_Llin (§III.4) est l'existence de structures centrales présentant une forte dépendance avec la polarisation de la sonde, et caractérisées par des pentes très abruptes, témoignant de l'existence de durées de vie très longues pour certaines observables excitées par la sonde. A la limite considérée ici d'un angle nul entre pompes et sonde, ces structures résultent de processus Rayleigh stimulés liés à la modification des populations des

niveaux de bande par la sonde [Rq.III-17], qui s'accompagne de la création dans la mélasse optique de réseaux d'observables (densité, orientation) modulées à la différence de fréquence entre les pompes et la sonde, et sur lesquelles les pompes viennent se diffracter, donnant ainsi naissance à un champ ayant les mêmes caractéristiques que la sonde, et pouvant interférer avec elle [Rq.III-18].

Le but de ce paragraphe est de donner une interprétation complète des différentes structures Rayleigh, en distinguant les deux configurations de polarisation \parallel et \perp de l'onde sonde étudiées expérimentalement par [Ver92] et rappelées au §III.4. Le calcul théorique des spectres Rayleigh est basé sur l'approche modale décrite au §R.4, et que nous ne détaillerons par ici (nous renvoyons à l'article [Cou92] pour tous les détails de la méthode). Nous nous concentrerons ici exclusivement sur la description des phénomènes physiques fondamentaux impliqués dans ces structures, et nous emploierons les critères de classification des résonances Rayleigh énoncés au chapitre II, afin de dégager les caractéristiques originales des processus Rayleigh stimulés ayant lieu dans les mélasses optiques lin \perp lin. Suivant ces critères, nous étudierons tout d'abord les caractéristiques des processus de relaxation (critère 2), en discutant les propriétés des modes propres dynamiques de la mélasse susceptibles d'être excités par la sonde dans les deux configurations de polarisation \parallel et \perp (§III.7.1). Nous décrirons ensuite les processus de modification des populations des niveaux d'énergie par la sonde (critère 3.a, §III.7.2.a et §III.7.3.a), ainsi que le mécanisme de diffraction des ondes pompes sur les réseaux d'observables modulés temporellement par la sonde (critère 3.c, §III.7.2.b et §III.7.3.b). Nous commenterons alors la forme et la dépendance des structures Rayleigh en fonction de la profondeur des puits de potentiel (§III.7.2.c et §III.7.3.c). Nous résumerons finalement les différentes caractéristiques de l'effet Rayleigh des mélasses lin \perp lin aux §III.7.2.d et §III.7.3.d.

7.1. Modes propres d'évolution des populations

Le calcul des spectres Rayleigh reposant sur une description modale de la dynamique des populations des niveaux de bande, il nous a paru important de consacrer une étude quelque peu détaillée aux modes propres d'évolution des populations dans le cas des mélasses lin \perp lin. La dynamique d'une telle mélasse est particulièrement complexe, puisqu'elle fait en principe intervenir un nombre infini de populations de niveaux d'énergie (états liés et états du continuum) couplées

[Rq.III-17] Le fait que l'onde sonde induit uniquement des modifications de populations, et aucune cohérence, dans le milieu, n'est pas totalement évidente. On en trouvera une démonstration à l'annexe A.III, et nous l'admettrons simplement ici.

[Rq.III-18] En fait, l'emploi d'un angle non nul entre pompes et sonde dans les expériences peut conduire à une contribution supplémentaire de type résonance Raman induite par le recul, semblable à celle considérée au §I.4.3.

entre elles. Plusieurs propriétés physiques de la mélasse et quelques approximations raisonnables vont toutefois nous permettre de circonscrire ce problème, non soluble dans toute sa généralité.

Tout d'abord, on s'attend physiquement à ce que l'emploi d'une onde sonde de très faible intensité ne conduise pas à la destruction de la mélasse, ou à des modifications importantes de sa température. On sait au contraire que dans l'esprit de la théorie de la réponse linéaire, les modifications du milieu par l'onde sonde ne vont que très peu déplacer le système par rapport à son état d'équilibre stationnaire. Nous intéressant aux situations proches de l'optimum du refroidissement sub-Doppler, pour lesquelles la population des niveaux très excités peut être négligée, il sera donc possible d'effectuer une troncature à partir d'un certain niveau dans le continuum, sans induire d'erreur importante dans les caractéristiques dynamiques de la mélasse ou dans les modes dynamiques du milieu excités par l'onde sonde. On se limitera ainsi dans la pratique aux 50 premiers états de bandes (liés et libres).

Il ne saurait non plus être question d'étudier l'ensemble des modes dynamiques possibles de la mélasse. On sait par exemple qu'un choix quelconque de direction de propagation de l'onde sonde conduirait inévitablement, par brisure de l'invariance de la mélasse par translation de $\lambda/2$, à la création de cohérences entre états d'indices de Bloch différents. Il deviendrait alors nécessaire de se préoccuper des propriétés dynamiques de telles cohérences. On pourrait en particulier songer à la prise en compte rigoureuse d'un angle non nul entre la sonde et les pompes (ce qui est le cas de l'expérience [Ver92]), induisant l'excitation par la sonde de modes très lents de diffusion spatiale sur une échelle de plusieurs dizaines, voire plusieurs centaines de puits de potentiel. Notre but est ici de nous approcher le plus possible d'une situation idéale, respectant au maximum les propriétés de symétrie de la mélasse en l'absence de sonde, de manière à n'impliquer que des modes dynamiques de fort degré de symétrie, d'interprétation physique plus aisée.

Le préalable à toute étude dynamique sera le choix d'une base d'états permettant de caractériser entièrement l'état instantané du système au moyen du nombre minimum d'observables. Un exemple caractéristique d'une telle approche sera ici l'utilisation de la base adiabatique plutôt que la base des états de Bloch en l'absence de sonde, afin de caractériser l'état de la mélasse perturbée par la sonde au moyen seulement de populations (et non pas de cohérences qui compliqueraient singulièrement le calcul des spectres (voir [Cou92])). Une fois ce choix effectué, on s'attachera à définir clairement la famille des modes dynamiques susceptibles d'être excités par l'onde sonde, et donc de jouer un rôle dans le calcul des spectres.

Le respect de ces règles garantira alors une simplification maximale de l'étude des propriétés dynamiques du système et du calcul des spectres Rayleigh, tout en facilitant considérablement l'interprétation physique des résultats.

a. Propriétés générales

La dynamique des populations des niveaux de bandes est entièrement régie par le système d'équations de taux (III.3-10) précédemment considéré :

$$\dot{\pi}_{n,q,\mu} = -\gamma_{n,q,\mu} \pi_{n,q,\mu} + \sum_{n',q',\mu'} \gamma_{n',q',\mu' \rightarrow n,q,\mu} \pi_{n',q',\mu'} \quad (\text{III.7.1-1})$$

et qu'il est commode de réécrire sous la forme opératorielle :

$$\dot{\Pi} = \mathcal{L} \cdot \Pi \quad (\text{III.7.1-2})$$

où Π désigne le vecteur colonne contenant toutes les populations $\pi_{n,q,\mu}$. On obtient alors les modes propres d'évolution ainsi que les taux de relaxation correspondant, par diagonalisation de l'opérateur \mathcal{L} . Cet opérateur n'admet qu'un seul mode de valeur propre nulle et de trace non nulle, correspondant à l'état stationnaire des populations des niveaux d'énergie. Les autres modes sont de valeurs propres complexes non nulles [Rq.III-19], de partie réelle strictement négative (pour des raisons physiques évidentes, ces modes étant associés à une relaxation vers l'état stationnaire), et de trace nulle [Rq.III-20]. Ce sont ces derniers modes qui seront susceptibles d'être excités par la sonde.

Afin de mieux caractériser les modes propres dynamiques, considérons tout d'abord les propriétés de symétrie de l'opérateur \mathcal{L} . Il est facile de s'assurer que celui-ci est invariant par la transformation \mathcal{T} définie par :

$$\mathcal{T}|z\rangle \otimes |\mu\rangle = \left|z + \frac{\lambda}{4}\right\rangle \otimes |-\mu\rangle \quad (\text{III.7.1-3})$$

correspondant à la translation de $\lambda/4$ avec changement de sous-niveau Zeeman. Ceci a alors pour conséquence immédiate que les modes propres dynamiques se transformeront par \mathcal{T} en eux-même, à un facteur de phase près.

Caractérisons à présent les modes susceptibles d'être excités par l'onde sonde dans les deux cas de polarisation \parallel et \perp envisagés ici, en se basant uniquement sur les propriétés de

[Rq.III-19] L'existence d'une partie imaginaire dans les valeurs propres associées aux modes propres d'évolution des populations ne doit pas surprendre : elle est associée à des modes de relaxation-oscillation qui sont généralement présents dès lors que plus de deux niveaux ont des évolutions couplées. Toutefois, l'opérateur \mathcal{L} étant réel, toutes les valeurs propres complexes seront accompagnées de leur complexe conjugué dans le spectre de \mathcal{L} .

[Rq.III-20] La condition de trace nulle signifie en particulier que tout mode propre d'évolution fera toujours intervenir un grand nombre de populations de différents niveaux d'énergie, et ne sera jamais associé à un seul état de bande.

symétrie de l'excitation de la sonde vis-à-vis de \mathcal{T} . Comme mentionné au §R.5, l'excitation du milieu par la sonde est entièrement caractérisée par un opérateur ρ^\dagger , donné selon la configuration de polarisation par :

$$\rho_{\parallel}^\dagger = \frac{2}{3}(\mathbb{I} - e^{2ikz} J_z/\hbar) \quad (\text{III.7.1-4})$$

$$\rho_{\perp}^\dagger = \frac{2}{3}(-J_z/\hbar + \mathbb{I}e^{2ikz}) \quad (\text{III.7.1-5})$$

où \mathbb{I} est l'opérateur identité, et J_z l'opérateur moment cinétique selon l'axe Oz. On vérifie alors immédiatement que ces opérateurs se transforment par \mathcal{T} selon :

$$\mathcal{T} \rho_{\parallel}^\dagger \mathcal{T}^\dagger = \rho_{\parallel}^\dagger \quad (\text{III.7.1-6})$$

et :

$$\mathcal{T} \rho_{\perp}^\dagger \mathcal{T}^\dagger = -\rho_{\perp}^\dagger \quad (\text{III.7.1-7})$$

Ce résultat signifie que dans la configuration de polarisation \parallel , seuls les modes propres dynamiques invariants par \mathcal{T} seront excités par la sonde. Ils correspondent à des modifications des populations exactement identiques pour les puits de potentiel $U_+^{(0)}$ et $U_-^{(0)}$. Nous qualifierons par la suite ces modes de "pairs". De même, dans la configuration de polarisation \perp , seuls les modes propres dynamiques changeant de signe par \mathcal{T} seront excités par la sonde. Ils correspondent à des modifications des populations exactement opposées pour les puits de potentiels $U_+^{(0)}$ et $U_-^{(0)}$. Nous les qualifierons de modes "impairs". Les caractéristiques de ces deux familles de modes indiquent en outre que l'on pourra décrire de façon satisfaisante les aspects dynamiques de la modification du milieu par la sonde en considérant le modèle simple d'une mélasse d'extension spatiale λ , avec conditions aux limites périodiques [Rq.III-21]. Ceci permettra de simplifier notablement la diagonalisation de l'opérateur \mathcal{L} en prenant uniquement en compte deux valeurs de l'indice de Bloch ($q=0$ et $q=k$).

[Rq.III-21] Ceci ne serait en particulier pas possible dans le cas d'un angle non nul entre pompes et sonde.

b. Configuration de polarisation II

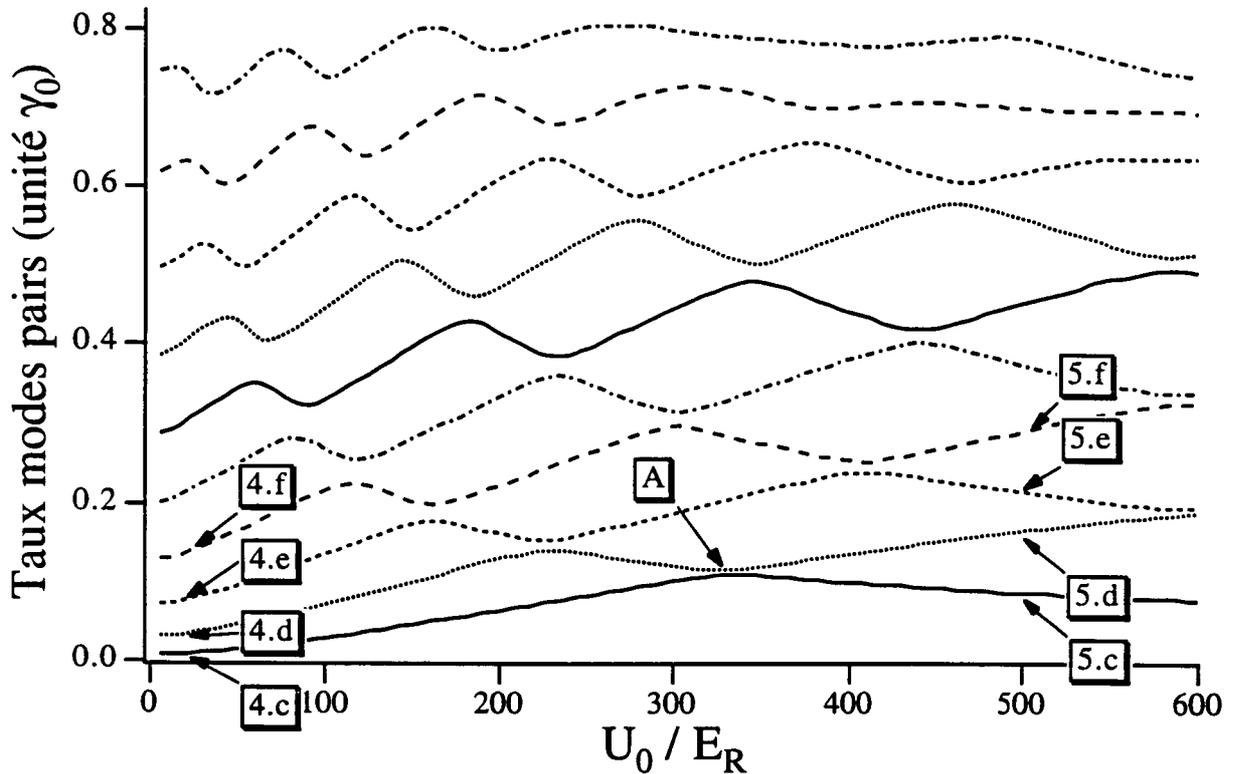


FIG. III.7.1-1 : Dépendance de la partie réelle des taux de relaxation des modes dynamiques pairs $m=1-10$ en fonction de U_0/E_R . Les différentes courbes apparaissent comme résultant d'anticroisements entre deux familles de modes. L'une est associée à des taux décroissant en fonction de la profondeur du potentiel. L'autre correspond à des taux de relaxation croissant avec U_0 , dont la valeur asymptotique à la limite des puits de potentiel plats suit en très bonne approximation une loi en m^2 . Le calcul a été effectué en prenant en compte les 50 premiers niveaux de bandes, avec deux vecteurs de Bloch, les fonctions d'onde étant évaluées après troncature de l'espace des impulsions de $-88 \hbar k$ à $+88 \hbar k$.

Nous débutons par l'étude des modes pairs, susceptibles d'être excités par l'onde sonde dans la configuration de polarisation II. Considérons tout d'abord la dépendance des taux de relaxation de ces modes en fonction du paramètre sans dimension U_0/E_R , caractérisant entièrement les propriétés de la mélasse. Nous avons représenté sur la Fig. III.7.1-1 la partie réelle des taux de relaxation des modes $m = 1-10$ (les modes propres sont classés par durée de vie décroissantes, le mode $m=0$ étant associé à l'état stationnaire de la mélasse, de taux de relaxation nul). On constate immédiatement sur cette figure que les différents taux de relaxation (normalisés à γ_0) sont organisés en deux familles de courbes s'anticroisant à chaque intersection.

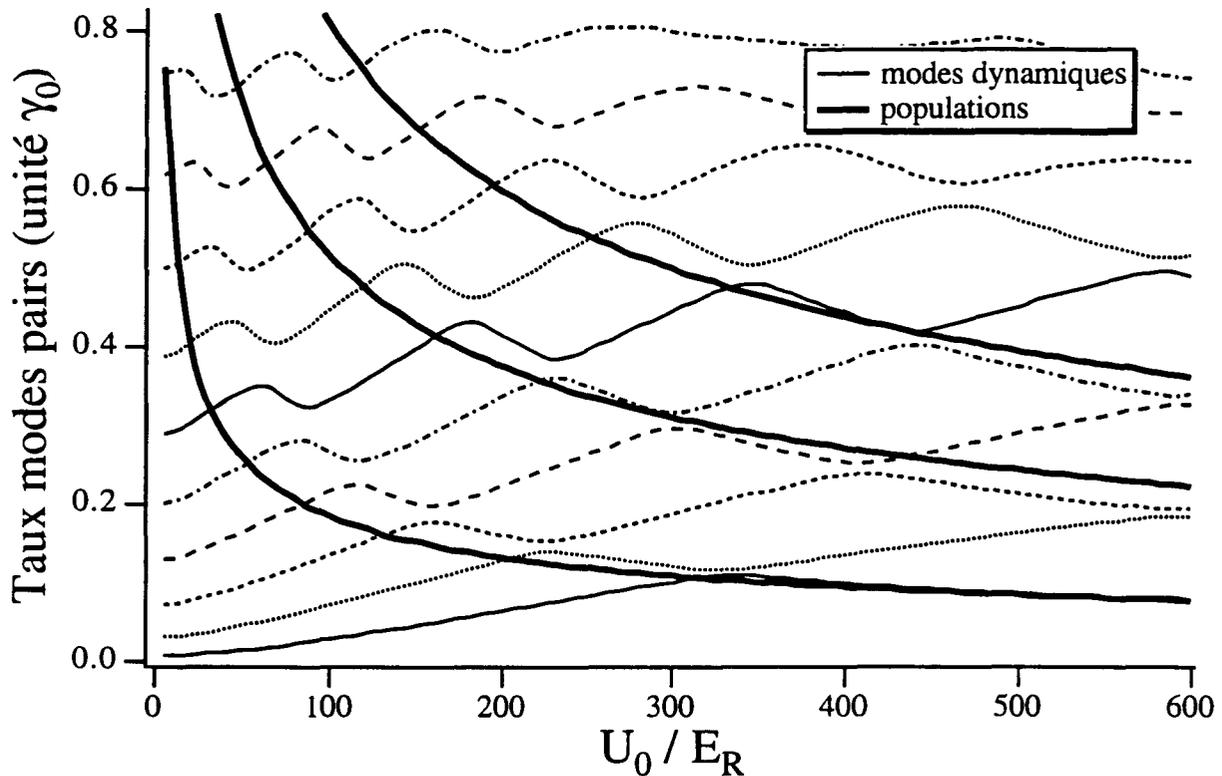


FIG. III.7.1-2 : Correspondance entre la partie réelle des taux de relaxation des modes dynamiques pairs de la famille “Lamb-Dicke” (représentés en traits fins) et les taux de relaxation individuels des populations des niveaux vibrationnels (représentés en gras). On constate que ces taux ont la même dépendance en fonction de U_0/E_R , et qu'ils deviennent quantitativement équivalents à la limite des potentiels profonds. Les conditions du calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.7.1-1.

La première famille correspond à une décroissance des taux de relaxation en fonction de la profondeur des puits de potentiel. La présence de cette famille est assez naturelle puisque l'on s'attend, comme dans le cas des modes de relaxation des cohérences entre niveaux de vibration considérés au paragraphe précédent, à ce qu'à la limite des potentiels suffisamment profonds, les modes d'évolution des populations soient associés aux taux de relaxation des populations individuelles des niveaux de vibrations, tels qu'ils sont donnés par (III.5-8). On peut d'ailleurs s'assurer sur la Fig. III.7.1-2 de la correspondance entre taux effectifs de relaxation des populations (dont les valeurs issues du calcul numérique sont représentées en gras sur la Fig. III.7.1-2 pour les trois premiers niveaux vibrationnels) et taux d'évolution des modes propres dynamiques de la première famille, particulièrement à la limite des puits de potentiel profonds. Nous ferons référence par la suite à cette famille en la désignant par “famille des modes Lamb-Dicke”, afin de rappeler l'origine physique de la dépendance de ses taux de relaxation en fonction de la profondeur de potentiel.

La seconde famille est associée à des taux de relaxation croissant avec U_0 . Comme nous le montrons dans la remarque ci-dessous en étudiant la structure des modes d'évolution associés, cette famille correspond à des *processus de diffusion* dans l'espace des impulsions. C'est pourquoi nous utiliserons la dénomination "modes de diffusion" pour les éléments de cette seconde famille.

REMARQUE

Un premier indice provient des valeurs asymptotiques des taux de relaxation de ces modes à la limite des puits de potentiel très peu profonds, qui suivent en très bonne approximation une loi en $m^2 \gamma_0$. Or à la limite des puits de potentiel très peu profonds où la localisation atomique devient très faible, et la distribution d'impulsion atomique très large, il est possible de décrire la dynamique du milieu atomique au moyen d'une équation de diffusion pour la distribution d'impulsion w , du type [Cou92] :

$$\dot{w} = D_0 \frac{\partial^2 w}{\partial p^2} \quad (\text{III.7.1-8})$$

de coefficient de diffusion en impulsion $D_0 = \frac{11}{4} \hbar^2 k^2 \gamma_0$. Or l'Eq. (III.7.1-8) admet pour modes propres des fonctions du type :

$$w(p) = \cos(\sqrt{\gamma/D_0} p) \quad (\text{III.7.1-9})$$

Dans cette expression, $-\gamma$ désigne la valeur propre associée au mode propre, et qui est donnée par :

$$\gamma \approx m^2 \frac{\pi^2 D_0}{p_0^2} \quad (\text{III.7.1-10})$$

où p_0 désigne l'impulsion correspondant à l'état de bande de plus haute énergie considéré lors du calcul des taux de relaxation, et où m est l'entier non nul caractérisant le mode. On peut alors s'assurer qu'en utilisant la valeur de p_0 correspondant à la cinquantième bande, l'expression (III.7.1-10) redonne avec une très bonne précision les valeurs asymptotiques des taux de relaxation de la seconde famille, et notamment la loi en m^2 .

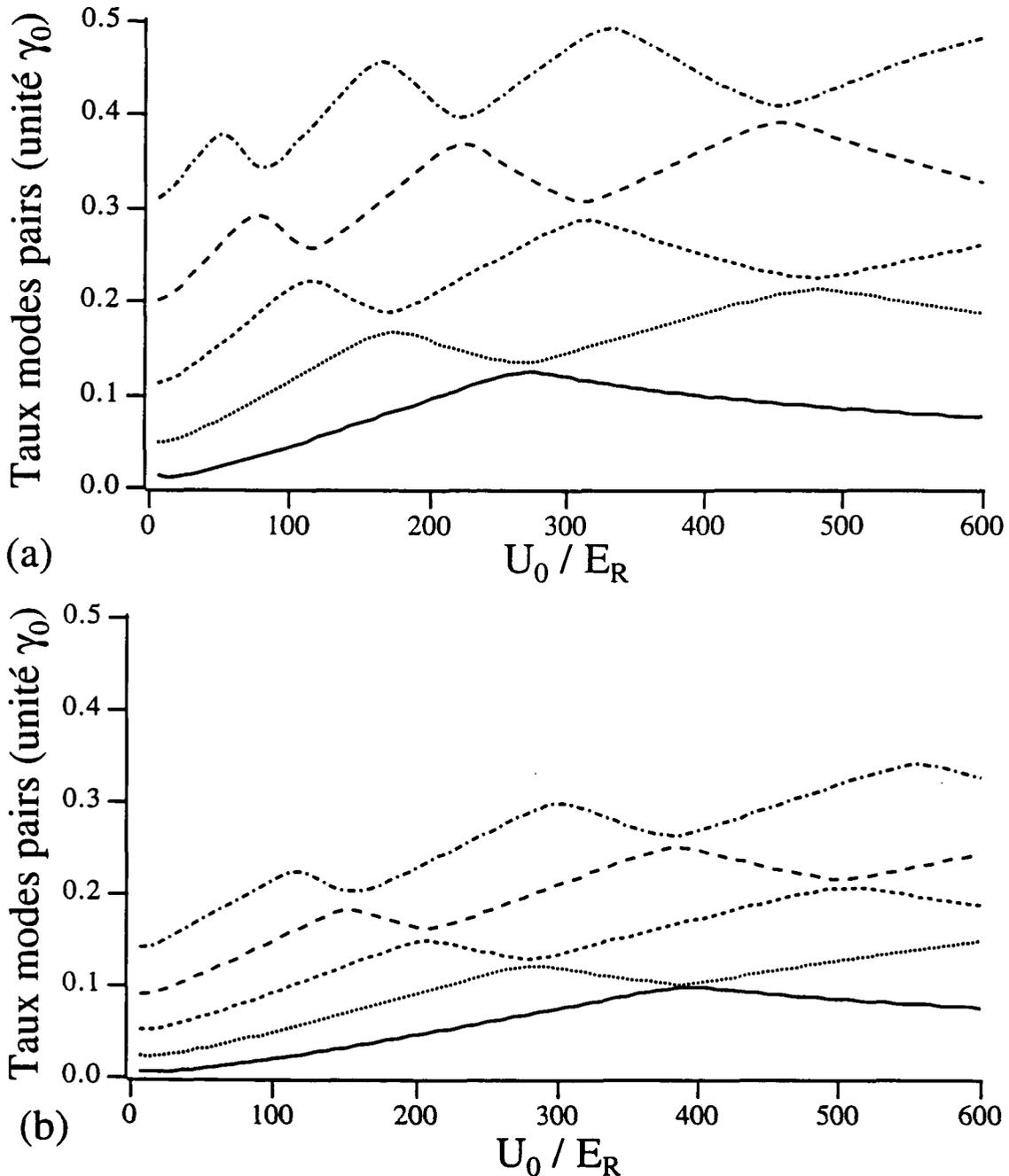


FIG. III.7.1-3 : Dépendance des parties réelles des taux de relaxation des modes pairs $m=1-5$ en fonction du nombre de bandes considéré pour la diagonalisation de l'opérateur dynamique \mathcal{L} . (a) Cas où les 40 premières bandes ont été prises en considération. (b) Cas où les 60 premières bandes ont été prises en considération. On constate, par comparaison avec la Fig. III.7.1-1, que plus le nombre de bandes considéré est important, plus les taux de relaxation des modes diffusifs diminue, conformément à l'estimation (III.7.1-10). La valeur asymptotique de ces taux à la limite des puits de potentiel plats suit dans tous les cas une loi en m^2 .

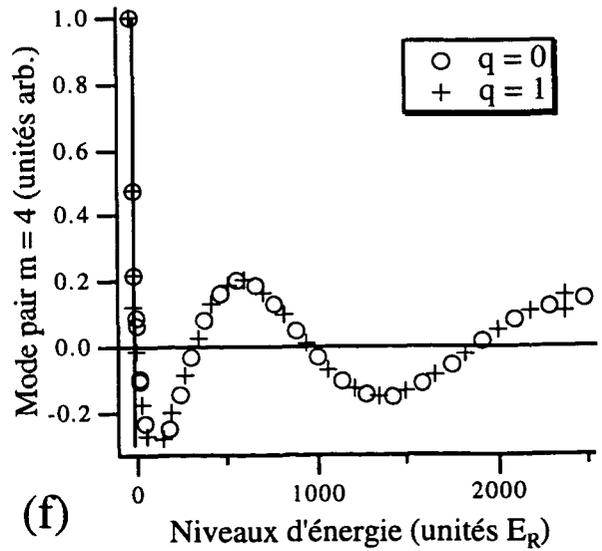
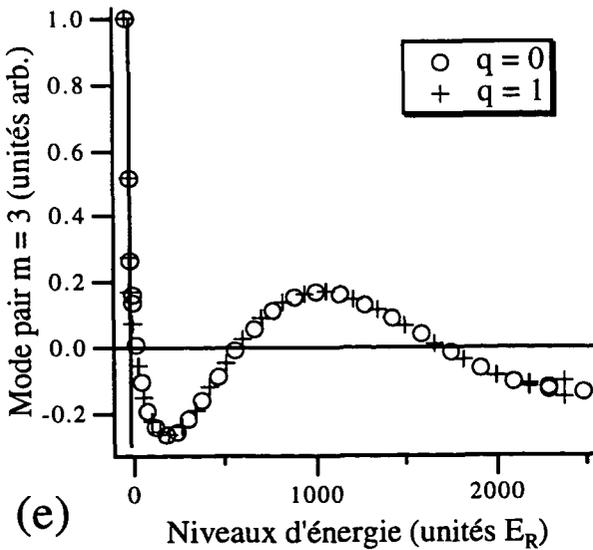
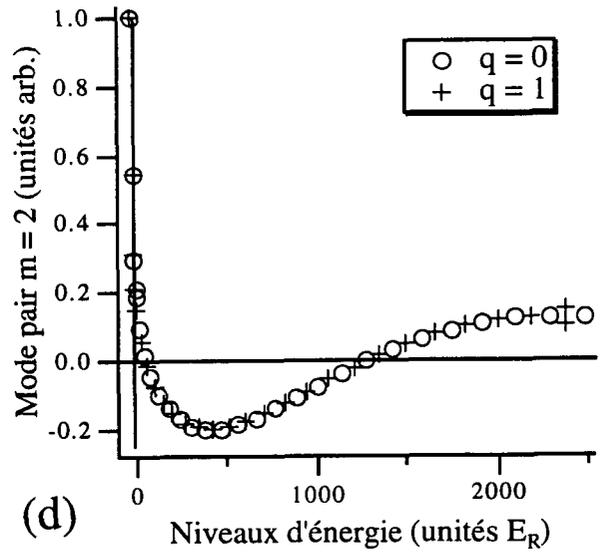
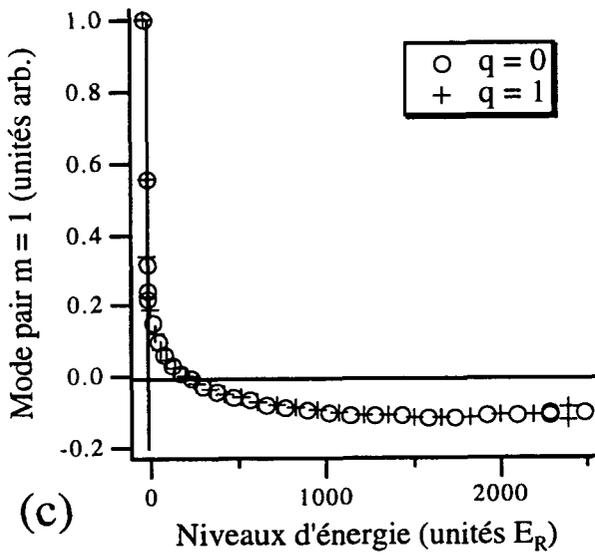
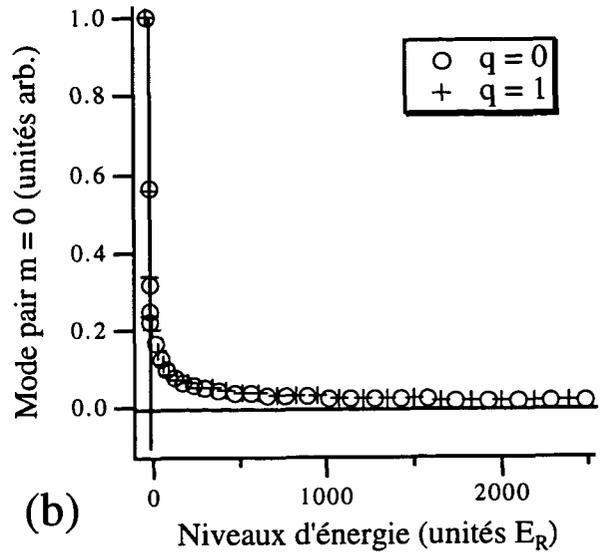
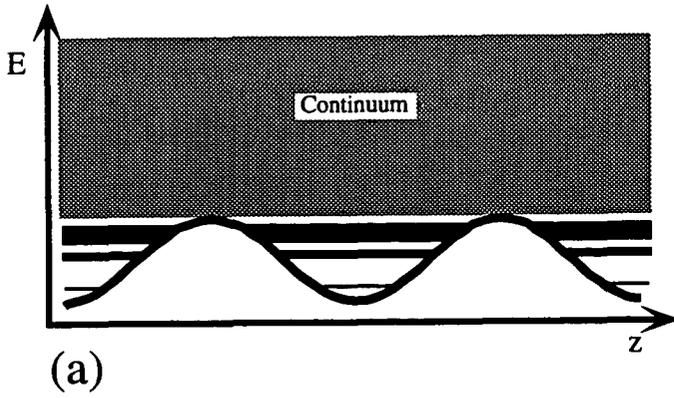
Une autre conséquence de la formule (III.7.1-10) est qu'en modifiant le nombre de bandes considérées lors du calcul des taux de relaxation, on doit constater une modification

sensible des taux de relaxation de la deuxième famille, tendant à augmenter pour un nombre de bandes plus faible, et à diminuer pour un nombre plus élevé. C'est ce que l'on peut vérifier sur la Fig. III.7.1-3 où l'on a représenté la dépendance des taux de relaxation des modes pairs $m=1-5$ en fonction de U_0/E_R , en prenant en compte les 40 (Fig. III.7.1-3(a)) ou 60 (Fig. III.7.1-3(b)) premiers états de bandes [Rq.III-22].

Afin de conforter notre interprétation physique des deux familles de modes pairs, nous étudions à présent la structure précise de quelques modes dynamiques pour différentes valeurs du paramètre U_0/E_R . Les modes pairs étant caractérisés par des modifications identiques des populations des niveaux d'énergie des puits de potentiel $U_+^{(0)}$ et $U_-^{(0)}$, nous considérerons ici uniquement les populations de l'un des deux puits. Notons également que la propriété de trace nulle des modes implique ici que la somme des modifications de populations d'un *même* puits soit identiquement nulle. Les modes pairs décrivent donc des processus de redistribution de populations entre les différents niveaux d'un même puits.

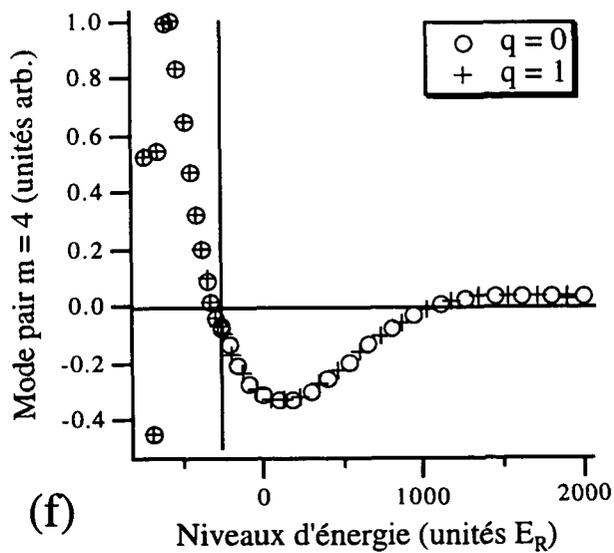
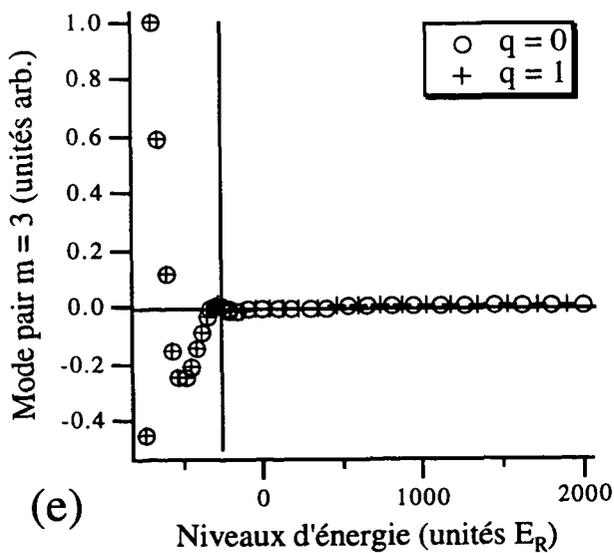
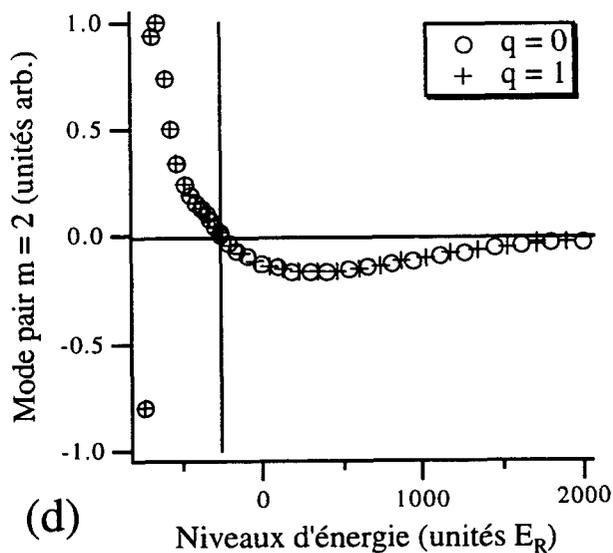
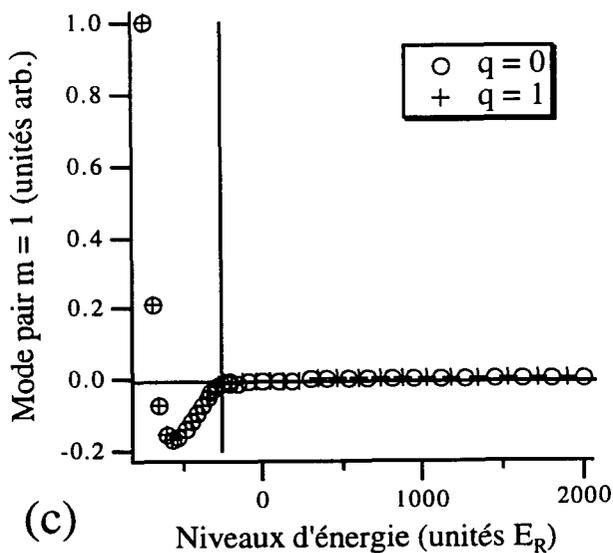
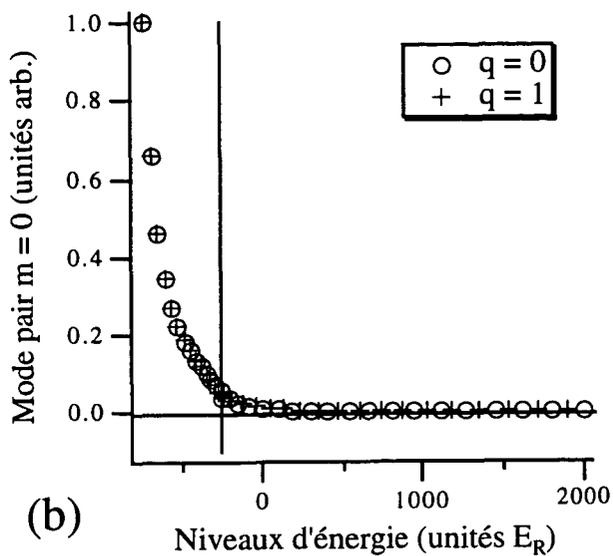
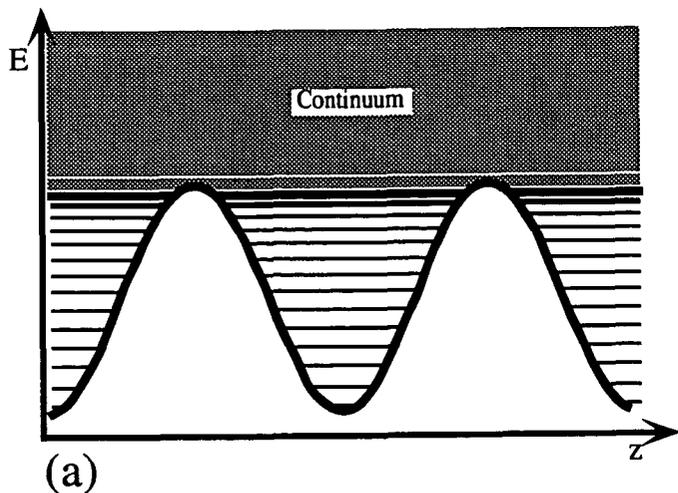
Nous débutons notre analyse par le cas des puits de potentiel très peu profonds. Nous avons représenté sur la Fig. III.7.1-4 la structure des cinq premiers modes pairs $m=0-4$ pour $U_0/E_R = 20$. Le mode $m=0$ (Fig. III.7.1-4(b)), associé à la distribution stationnaire de populations des niveaux de bandes, montre une forte population des états du continuum, indiquant une faible localisation. Conformément à notre attente, les quatre autres modes (Fig. III.7.1-4(c-f)) indiqués sur la Fig. III.7.1-1 par les labels 4.c-f, et appartenant à la famille des modes de diffusion, correspondent approximativement à la forme (III.7.1-9), faisant largement intervenir les états du continuum (correspondant à des états d'impulsion bien définie en valeur absolue), tout en présentant un nombre d'oscillations croissant avec m . Ces modes correspondent donc bien à un processus de diffusion en impulsion des atomes, et l'on s'attend à ce qu'ils jouent un rôle important dans les spectres Rayleigh à la limite des puits de potentiels peu profonds. Notons enfin qu'il n'est pas surprenant de trouver parmi les modes pairs des modes décrivant un tel mécanisme de diffusion, puisque l'on sait que les transitions entre niveaux de bande d'un même puits sont principalement responsables du phénomène d'échauffement de la mélasse, le refroidissement proprement dit étant lié aux transitions avec changement de sous-niveau Zeeman [Cas92].

[Rq.III-22] La sensibilité des modes dynamiques au choix du nombre de bandes ne signifie en rien une instabilité numérique du calcul des spectres Rayleigh. Il faut en effet garder à l'esprit que c'est la forme particulière du terme d'excitation du milieu par la sonde qui détermine les caractéristiques du spectre, et dans la mesure où ce terme est stable vis-à-vis du nombre de bandes considéré, aucune instabilité numérique du spectre n'est à redouter, du moins tant que la profondeur des puits de potentiel ne devient pas *trop* faible.



Nous considérons à présent le cas des puits de potentiel très profonds, pour lesquels on s'attend à voir apparaître la famille des modes Lamb-Dicke. Nous avons ainsi représenté sur la Fig. III.7.1-5 la structure des cinq premiers modes pairs $m=0-4$ pour $U_0/E_R = 500$. Le mode $m=0$ (Fig. III.7.1-5(b)), associé à la distribution stationnaire de population des niveaux de bandes, montre alors une population négligeable des niveaux du continuum, indiquant une forte localisation atomique. Les quatre autres modes (Fig. III.7.1-5(c-f)), indiqués sur la Fig. III.7.1-1 par les labels 5.c-f, se partagent en deux catégories. Premièrement, les modes $m=1$ et $m=3$ (Fig. III.7.1-5(c,e)) appartiennent à la famille Lamb-Dicke, et sont respectivement associés aux taux de relaxation de la population des niveaux vibrationnels $n=0$ et $n=1$. Ces modes se distinguent du type diffusif en ce qu'ils font uniquement intervenir des redistributions de populations entre états *liés*. On remarque de plus que le taux qui leur est associé correspond au taux de relaxation du niveau vibrationnel subissant la modification de population la plus importante (niveau $n=0$ pour le mode $m=1$, et $n=1$ pour le mode $m=3$). On trouve ainsi confirmation du fait que dans le cas des puits de potentiel profonds, les niveaux vibrationnels imposent à certains modes dynamiques leurs taux de relaxation individuels. Il apparaît néanmoins clairement sur la Fig. III.7.1-5 que l'on ne peut pas pour autant considérer que ces modes ne font intervenir qu'un seul état de bande, même si c'est le niveau le plus affecté par la redistribution de populations qui impose sa dynamique au mode. Deuxièmement, les modes $m=2$ et $m=4$ (Fig. III.7.1-5(d,f)), de type diffusif, font intervenir les états du continuum et présentent des oscillations, de manière semblable au cas des puits de potentiel peu profonds. On constate ainsi que même dans le cas de puits de potentiel profonds où seuls les niveaux liés sont peuplés de manière significative, certains modes décrivent un processus de diffusion en impulsion par transfert de populations des états liés vers les états du continuum. On sait toutefois que l'onde sonde ne modifiera les populations des niveaux d'énergie que dans la mesure où ceux-ci seront peuplés de façon non négligeable, si bien que les modes de type diffusif ne seront que très peu excités par la sonde à la limite des puits de potentiel profonds, et ne seront donc que peu impliqués dans les spectres Rayleigh. Nous avons également illustré sur la Fig. III.7.1-6 le transfert du caractère Lamb-Dicke à un mode de diffusion (et vice-versa) au voisinage de l'anticroisement repéré par le label A sur la Fig. III.7.1-1.

FIG. III.7.1-4 : Structure des modes de relaxation de type diffusif dans le cas d'un puits de potentiel de profondeur $U_0 = 20 E_R$. (a) Spectre de bande montrant la présence de trois états liés. (b) Populations stationnaires des niveaux de bandes montrant un peuplement important des niveaux du continuum (repéré par la droite verticale). (c-f) Modes diffusifs de relaxation $m=1-4$ présentant des oscillations en nombre proportionnel à m . Les conditions du calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.7.1-1.



Nous avons également cherché à déterminer l'origine physique de l'augmentation des taux de relaxation des modes de diffusion, en fonction de la profondeur de potentiel. Dans ce but, nous avons représenté sur la Fig. III.7.1-7 la structure du mode de diffusion $m=1$ le long de la branche allant de $U_0/E_R = 10$ à $U_0/E_R = 300$ (Fig. III.7.1-1) et correspondant à une augmentation continue du taux de relaxation. On constate ainsi une diminution progressive de l'intervalle d'impulsion atomique affecté par le processus de diffusion (largeur de la structure associée aux états libres), allant nécessairement de pair avec une augmentation du taux de relaxation (voir Eq. (III.7.1-10)). L'augmentation des taux de relaxation des modes de diffusion avec U_0/E_R reflète ainsi le rôle décroissant des états d'énergie très excités dans la dynamique des atomes lorsque la profondeur du potentiel lumineux augmente. Cette propriété est à rapprocher du fait que la population totale des états quasi-libres est une fonction décroissante de U_0/E_R [Cas92].

FIG. III.7.1-5 : Structure des modes de relaxation $m=0-4$ pour un potentiel de profondeur $U_0 = 500 E_R$. (a) Spectre de bande indiquant la présence de 14 états liés. (b) Populations stationnaires des niveaux de bandes montrant un peuplement négligeable des niveaux du continuum. (c,e) Modes Lamb-Dicke. (d,f) Modes diffusifs. Les conditions du calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.7.1-1.

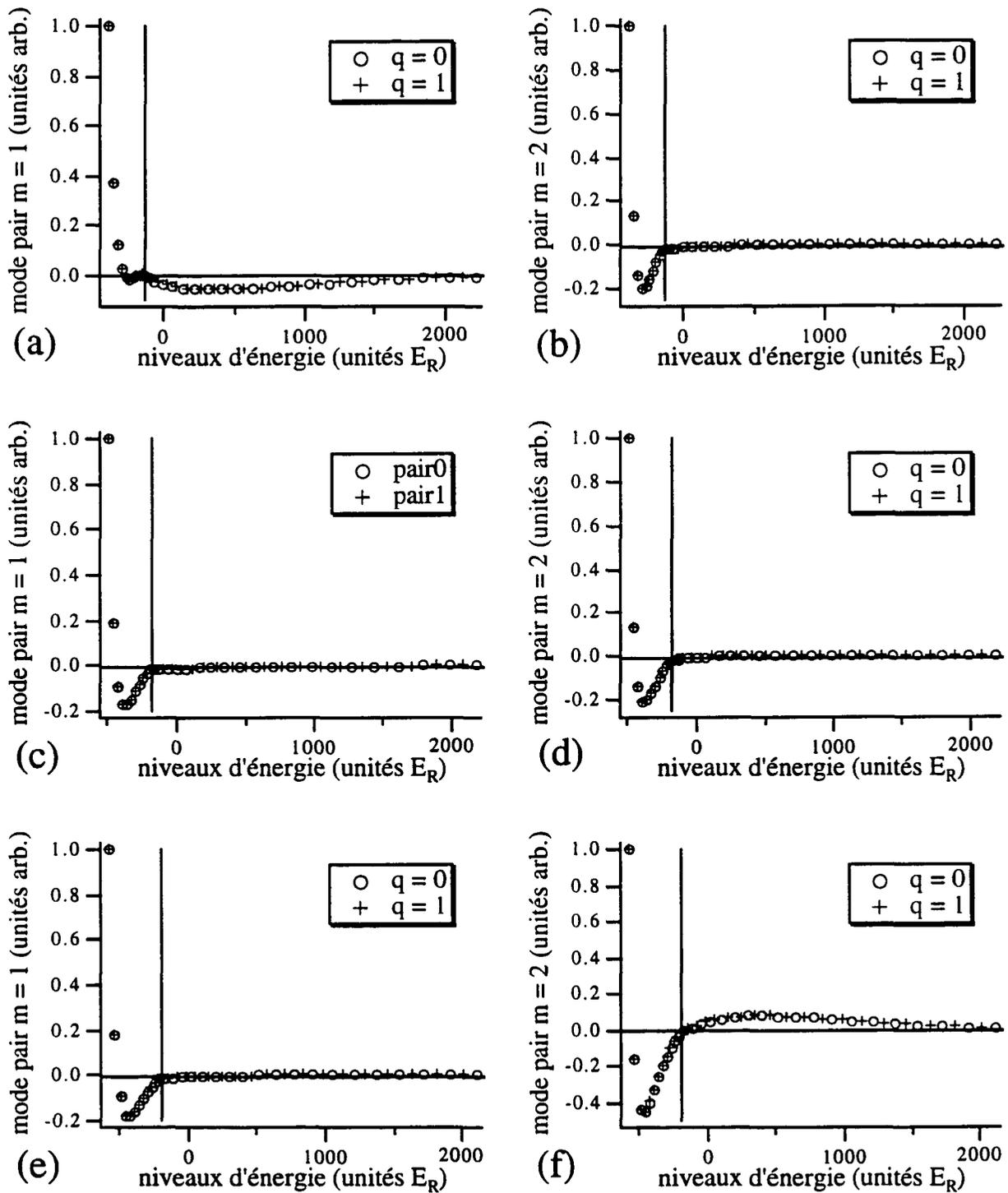


FIG. III.7.1-6 : Structure des modes dynamiques pairs $m=1$ et $m=2$ au voisinage de l'anticroisement repéré par le label A sur la Fig. III.7.1-1. (a-b) Avant l'anticroisement ($U_0/E_R = 270$), le mode $m=1$ est de type diffusif, tandis que le mode $m=2$ est de type Lamb-Dicke. (c-d) Lieu de l'anticroisement ($U_0/E_R = 330$), les modes $m=1$ et $m=2$ sont de type hybride, difficilement discernables. (e-f) Après l'anticroisement ($U_0/E_R = 390$), le mode $m=1$ est de type Lamb-Dicke, tandis que le mode $m=2$ est de type diffusif. Il y a eu échange de famille entre les deux modes lors de l'anticroisement. Les conditions de calcul sont identiques à celles de la Fig. III.7.1-1.

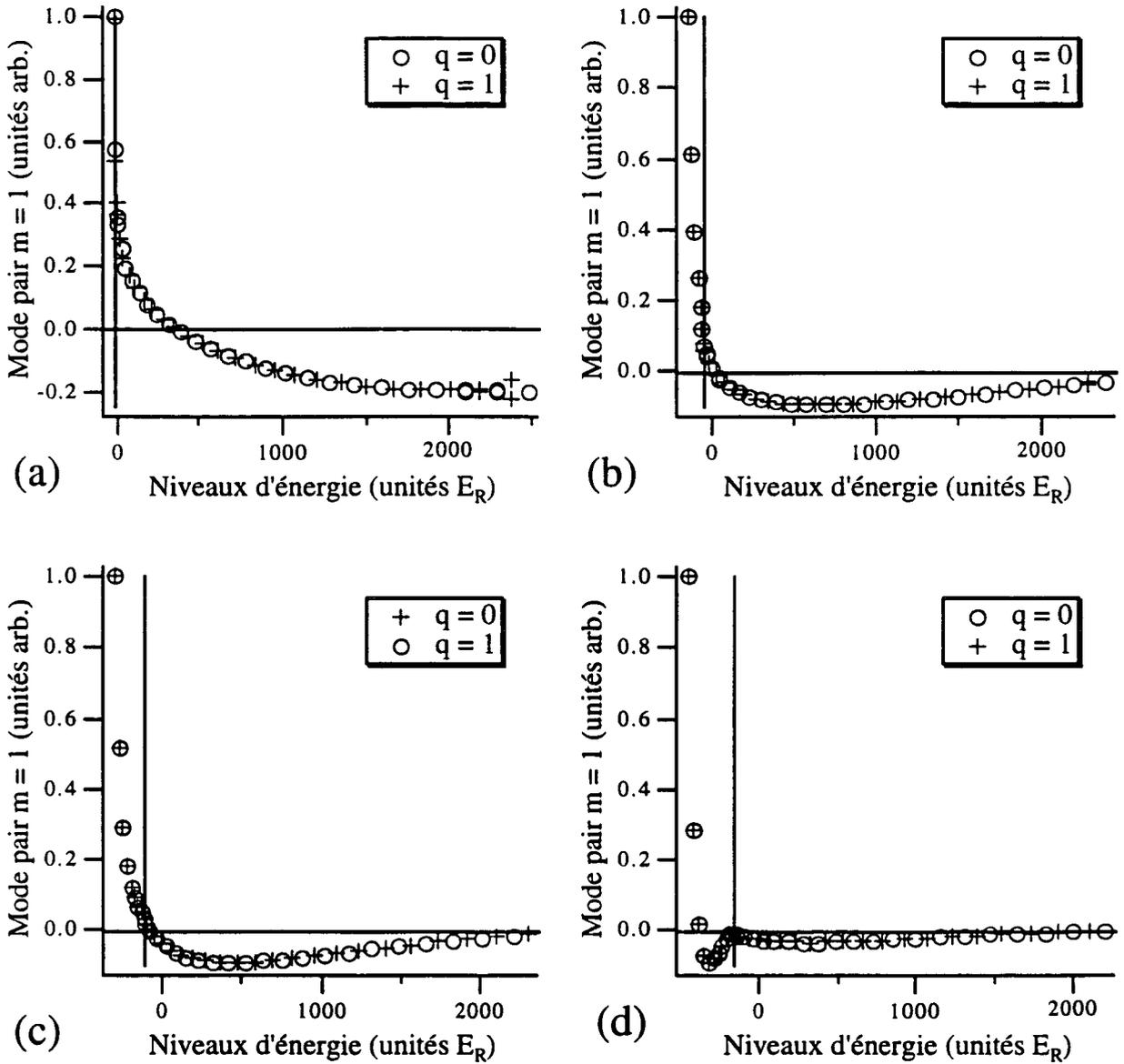


FIG. III.7.1-7 : Dépendance de la structure du mode pair de diffusion $m=1$ en fonction de la profondeur de potentiel. (a) $U_0/E_R = 10$ (puits de potentiel très peu profonds). (b) $U_0/E_R = 100$. (c) $U_0/E_R = 200$. (d) $U_0/E_R = 300$. Le domaine d'impulsion affecté par la diffusion diminue lorsque la profondeur de potentiel augmente, contribuant ainsi à l'augmentation du taux de relaxation du mode.

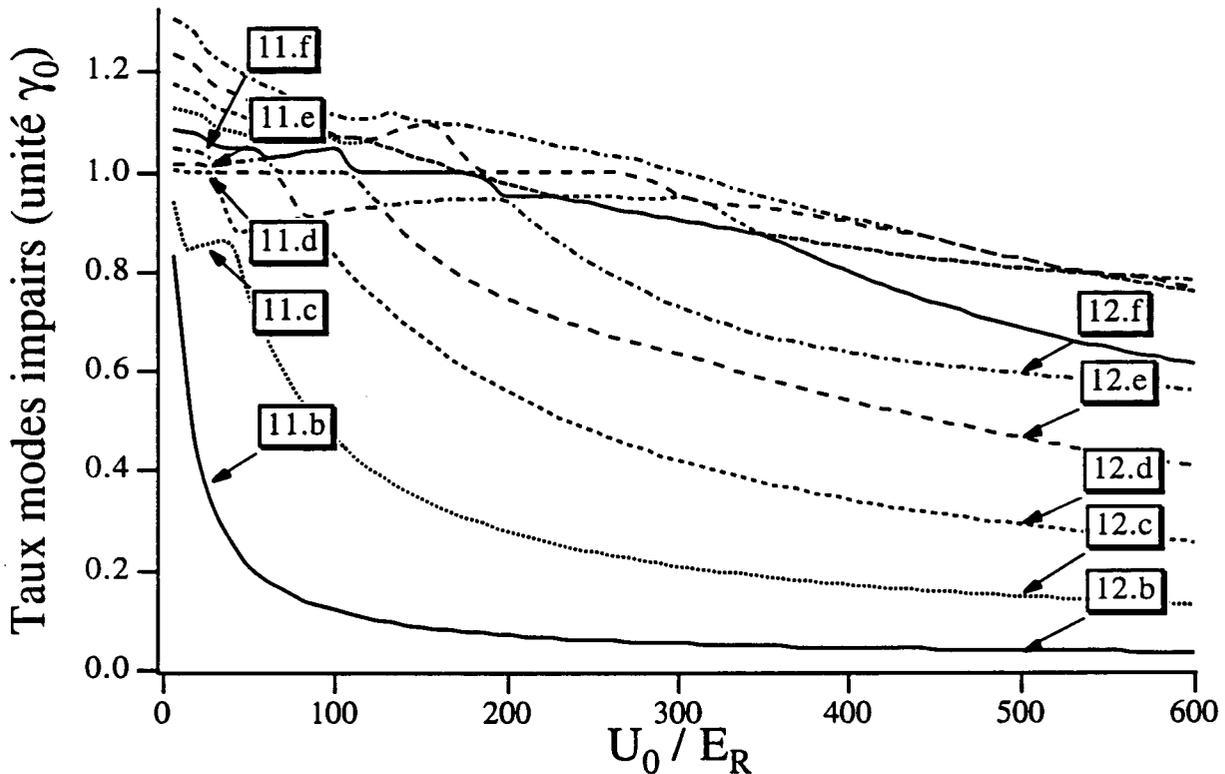
c. Configuration de polarisation \perp 

FIG. III.7.1-8 : Dépendance de la partie réelle des taux de relaxation des modes dynamiques impairs $m=0-9$ en fonction de U_0/E_R . Les différentes courbes apparaissent comme résultant d'anticroisements entre deux familles de modes. L'une est associée à des taux décroissant en fonction de la profondeur du potentiel, selon la même loi que les taux de relaxation pairs de la famille "Lamb-Dicke" (Fig. III.7.1-1). L'autre correspond à des taux de relaxation variant peu avec U_0 , et proches du taux de pompage optique γ_0 . Le calcul a été effectué dans les mêmes conditions que pour la Fig. III.7.1-1.

Nous étudions à présent le cas des modes impairs, susceptibles d'être excités par l'onde sonde dans la configuration de polarisation \perp . Comme nous l'avons vu précédemment, ces modes correspondent à des modifications *opposées* des populations des niveaux d'énergie associés à chacun des puits de potentiel $U_+^{(0)}$ et $U_-^{(0)}$. Ils décrivent donc des processus de pompage optique entre sous-niveaux Zeeman de l'atome, responsables du refroidissement "Sisyphes". Dans le cas d'atomes libres, on sait que de tels processus se produisent avec un taux égal au taux de pompage optique γ_0 . Nous avons par contre montré au §III.5, que dans le cas d'atomes liés, de tels processus font intervenir un taux fortement réduit par rapport à γ_0 en raison de l'effet Lamb-Dicke. Afin de vérifier ces différentes caractéristiques, nous avons représenté sur la Fig. III.7.1-8 la partie réelle des taux de relaxation des modes impairs $m = 0-9$ (les modes propres étant toujours classés par ordre décroissant de durée de vie). On constate à nouveau une organisation des

différents taux selon un réseau de courbes s'anticroisant, et pouvant être regroupés en deux familles.

Comme dans le cas des modes pairs, nous distinguons la présence d'une famille associée à une décroissance des taux de relaxation en fonction de la profondeur des puits de potentiel, en accord raisonnable avec la dépendance des durées de vie des populations individuelles des états vibrationnels liés (Fig. III.7.1-9) [Rq.III-23]. Comme nous le vérifierons par la suite, il est possible d'associer ces modes aux processus de pompage optique impliquant les états de bandes liés. Afin de rappeler l'influence de la localisation atomique sur les taux de relaxation de cette famille, nous en baptiserons les modes "Lamb-Dicke".

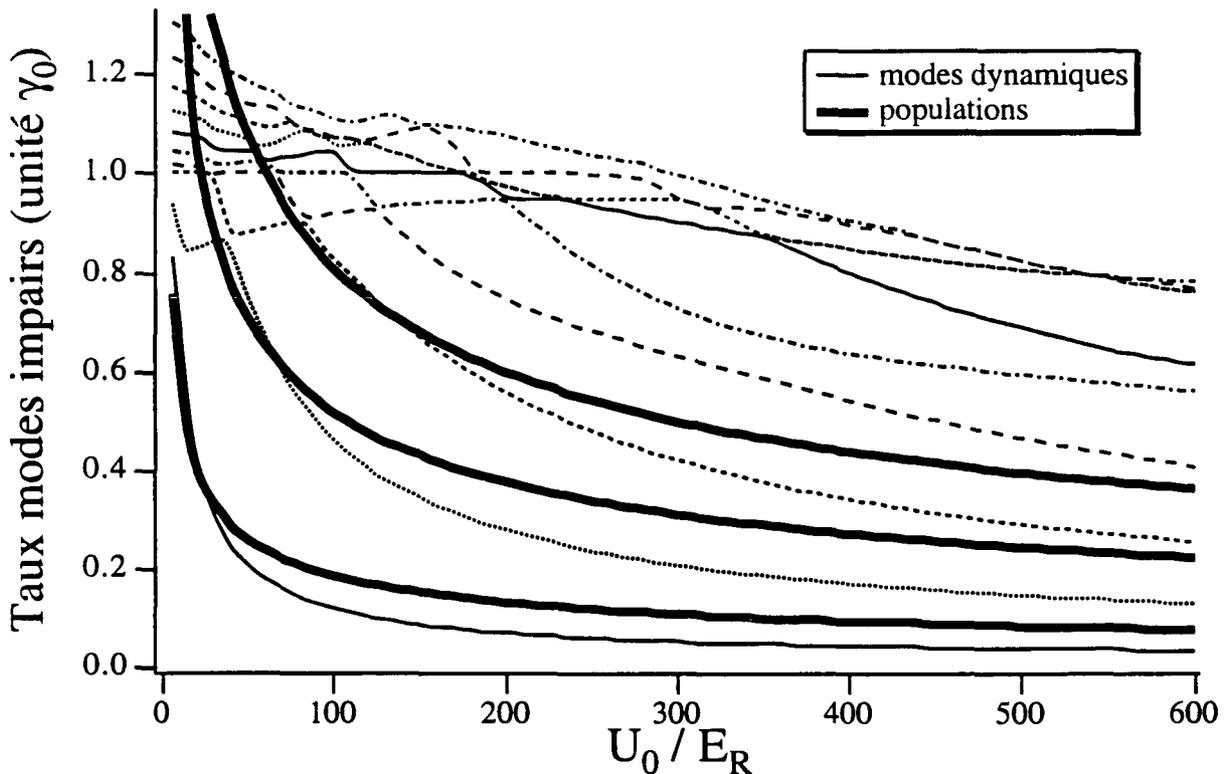


FIG. III.7.1-9 : Correspondance entre la partie réelle des taux de relaxation des modes dynamiques impairs de la famille "Lamb-Dicke" (représentés en traits fins) et les taux de relaxation individuels des populations des niveaux vibrationnels (représentés en gras). On constate que ces taux ont la même dépendance en fonction de U_0/E_R . Les conditions du calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.7.1-1.

[Rq.III-23] Les durées de vie des populations des niveaux de vibration n'étant pas uniquement liées aux processus de pompage optique, on ne s'attend pas à un accord *quantitatif* de ceux-ci avec les temps de relaxation des modes dynamiques.

La seconde famille présente des caractéristiques très différentes des familles de type “Lamb-Dicke” ou diffusif (Fig. III.7.1-1). Elle est en effet associée à des taux de relaxation très peu sensibles à la profondeur de puits, et toujours proches du taux de pompage optique γ_0 . Il semble donc naturel de l’associer à des processus de pompage optique impliquant des niveaux d’énergie quasi-libres. Nous nous référerons à cette famille en la qualifiant de “famille des modes de pompage optique”.

REMARQUE

Comme nous le montrons sur la Fig. III.7.1-10, ces modes ne sont que peu sensibles au nombre de bandes considérées pour le calcul numérique des taux. On ne retrouve donc pas le phénomène de forte instabilité des taux de relaxation constaté sur la Fig. III.7.1-3, et qui était lié au caractère particulier des modes de diffusion.

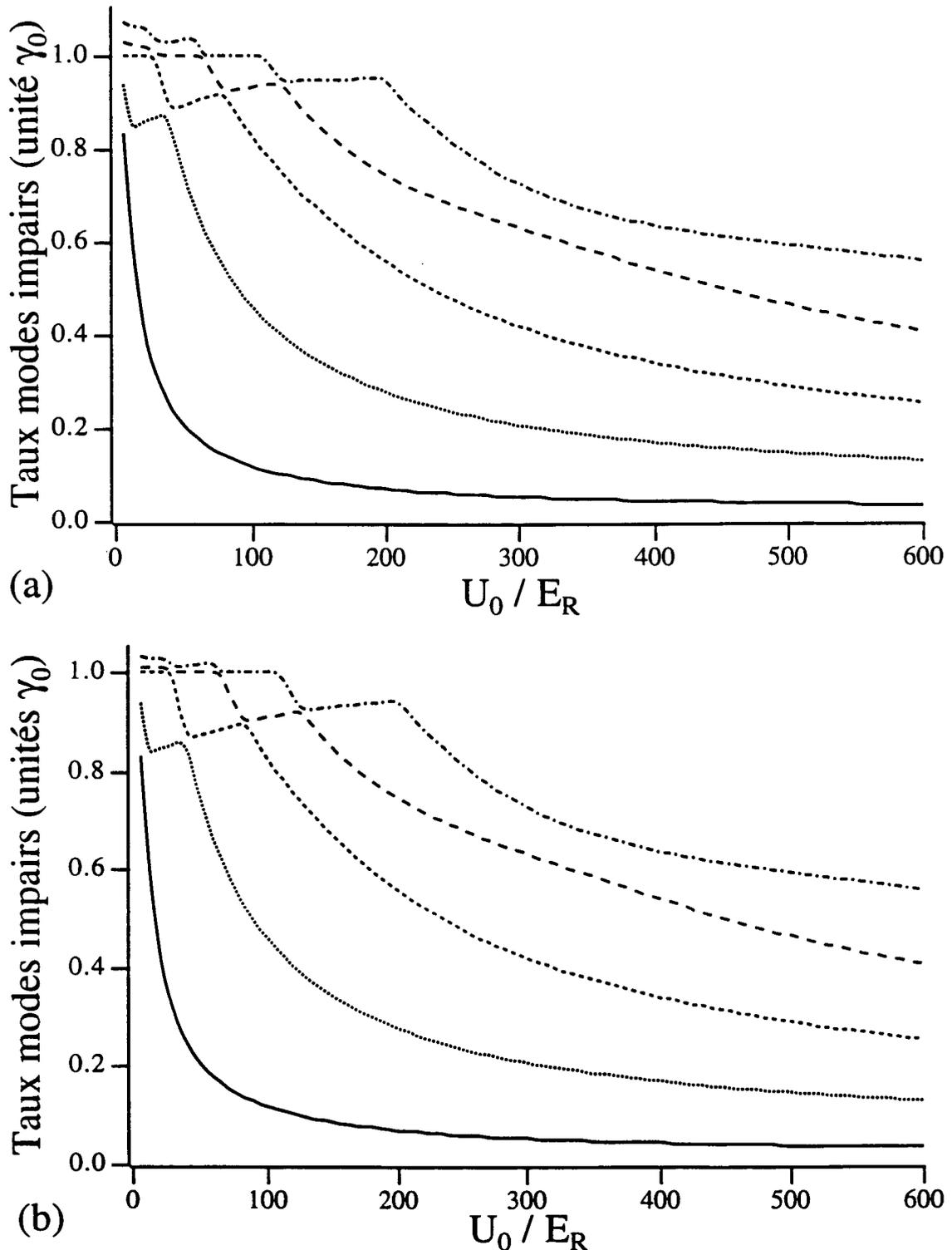
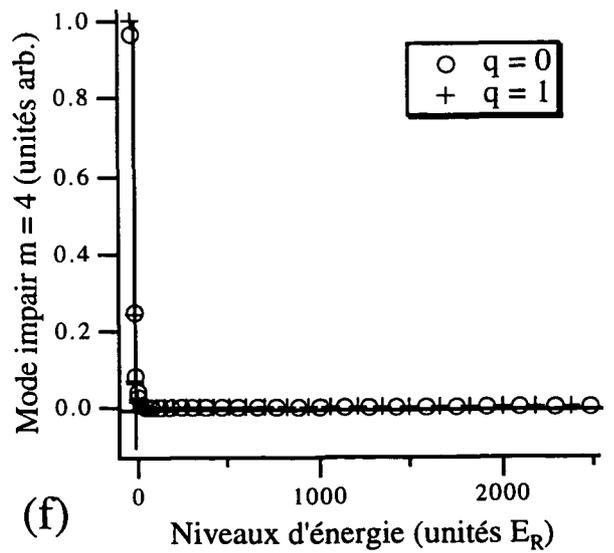
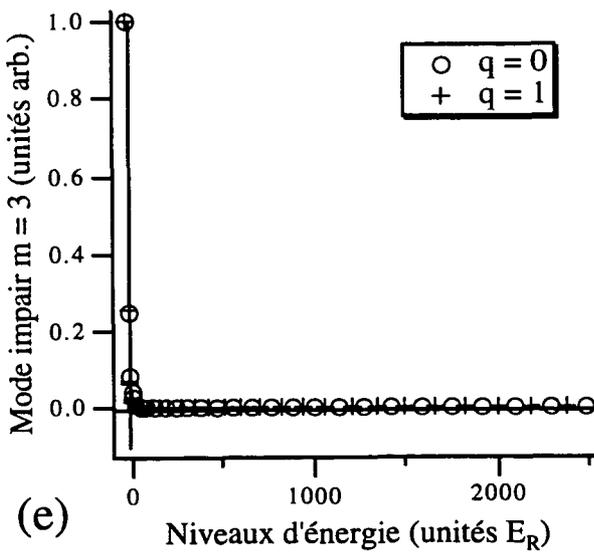
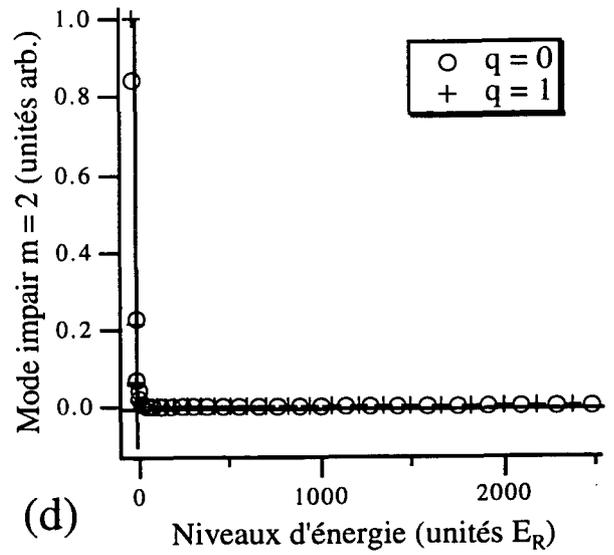
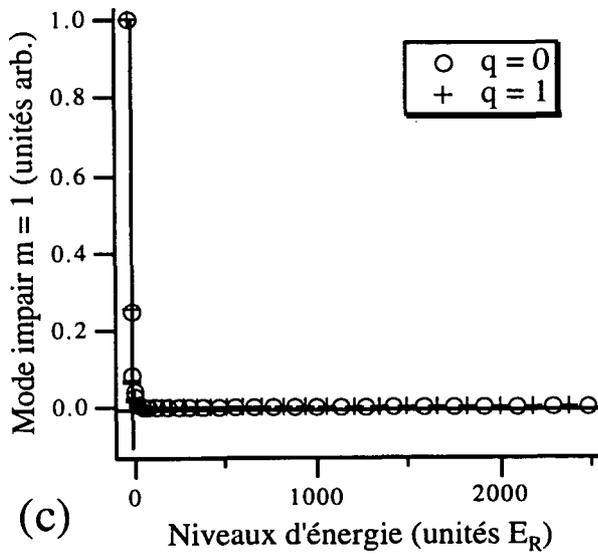
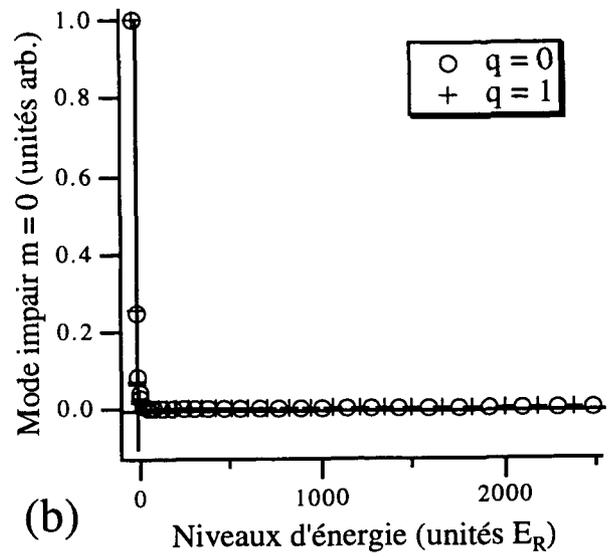
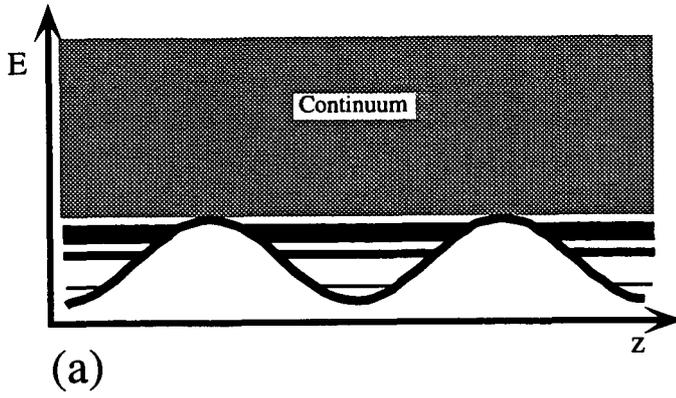


FIG. III.7.1-10 : Dépendance des parties réelles des taux de relaxation des modes impairs $m=0-4$ en fonction du nombre de bandes considéré pour la diagonalisation de l'opérateur dynamique \mathcal{L} . (a) Cas où les 40 premières bandes ont été prises en considération. (b) Cas où les 60 premières bandes ont été prises en considération. On constate par comparaison avec la Fig. III.7.1-8 que les taux des modes impairs ne sont que peu sensibles au choix du nombre de bandes.

Comme dans le cas de la configuration de polarisation \parallel , nous allons à présent confirmer notre interprétation physique des différentes familles de modes impairs en étudiant la structure de quelques modes dynamiques pour différentes valeurs du paramètre U_0/E_R . Mentionnons tout d'abord qu'à la différence des modes pairs, les modifications de populations des niveaux d'énergie étant ici opposées pour les puits $U_+^{(0)}$ et $U_-^{(0)}$, la propriété de trace nulle des modes est automatiquement satisfaite et n'impose aucune relation particulière sur les modifications de populations d'un puits donné. Nous constaterons ainsi en toute logique que la somme des modifications des populations d'un puits donné (seules représentées ici sur les figures, car suffisantes à caractériser entièrement un mode) ne sera généralement pas nulle, exprimant ainsi un transfert net de populations par pompage optique entre les différents puits de potentiel.

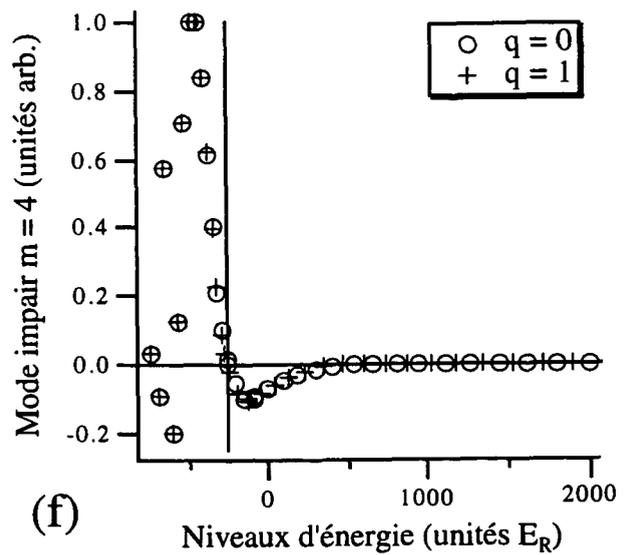
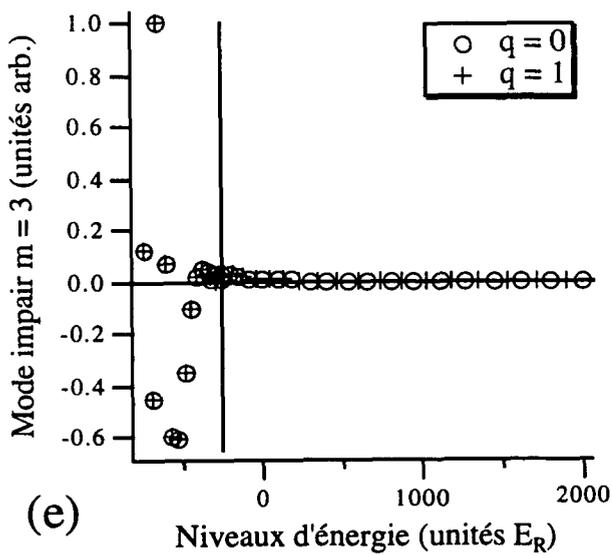
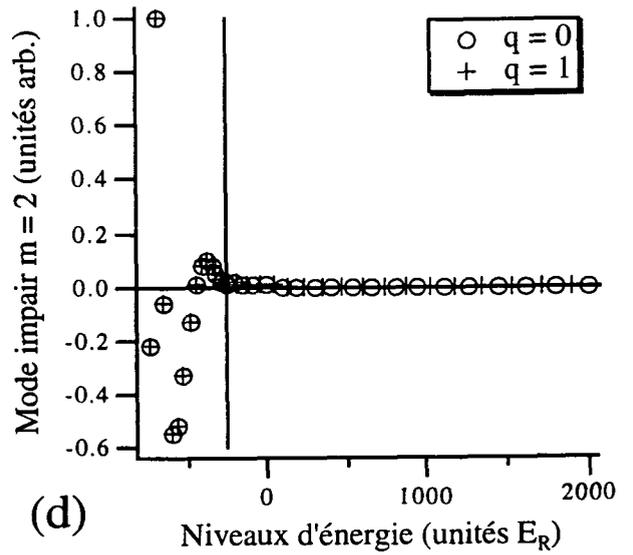
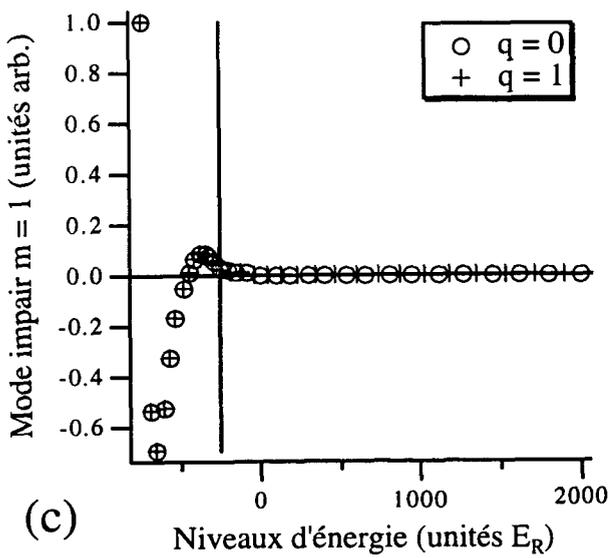
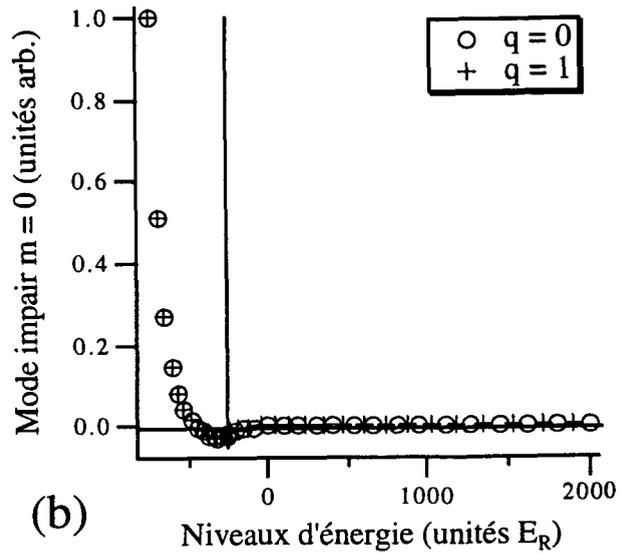
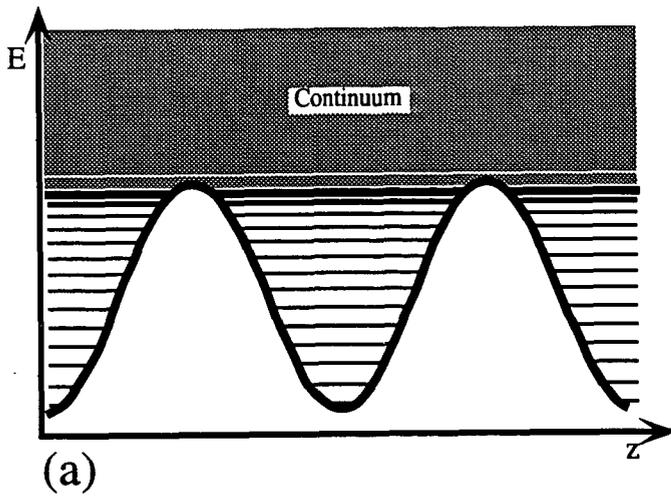
Nous débutons par le cas des puits de potentiel très peu profonds. Nous avons représenté sur la Fig. III.7.1-11 la structure des cinq premiers modes impairs $m=0-4$ pour $U_0/E_R = 20$ (indiqués sur la Fig. III.7.1-8 par les labels 11.b-f). On y constate une étonnante similitude entre les différents modes, pourtant associés à des taux de relaxation fort différents. Une étude plus détaillée que ne le permet l'échelle de la Fig. III.7.1-11 montre toutefois que des différences notables apparaissent entre ces modes pour les états du continuum. Ainsi, on peut s'assurer que le mode $m=0$ (Fig. III.7.1-11(b)) se différencie des modes $m=1-4$ (Fig. III.7.1-11(c-f)) par le fait que les modifications de populations des niveaux les plus excités sont beaucoup plus faibles, conformément à notre attente pour un mode de type "Lamb-Dicke". Comme annoncé, une caractéristique importante des modes impairs $m=0-4$ est que la modification totale des populations d'un même puits est strictement non nulle, reflétant ainsi l'existence d'un transfert net de populations entre les différents puits de potentiel.

FIG. III.7.1-11 : Structure des premiers modes de relaxation impairs dans le cas d'un potentiel de profondeur $U_0 = 20 E_R$. (a) Spectre de bande montrant la présence de trois états liés. (b-f) Les modes impairs $m=0-4$ présentent une très grande similitude entre eux, se différenciant uniquement par les modifications des populations des niveaux du continuum (invisibles à l'échelle considérée ici).



Nous considérons à présent le cas des puits de potentiel très profonds, pour lesquels on s'attend à voir clairement apparaître la famille des modes "Lamb-Dicke". Nous avons ainsi représenté sur la Fig. III.7.1-12 la structure des cinq premiers modes impairs $m=0-4$ pour $U_0/E_R = 500$, indiqués sur la Fig. III.7.1-8 par les labels 12.b-f. Les modes $m=0-3$ (Fig. III.7.1-12(b-e)) appartiennent à la famille Lamb-Dicke, faisant essentiellement intervenir des transferts de populations entre états *liés*. Comme dans le cas des modes pairs, on remarque que le taux de relaxation qui leur est associé est de l'ordre du taux de relaxation du niveau vibrationnel subissant la modification de population la plus importante (niveau $n=0$ pour les mode $m=0-1$, $n=1$ pour le mode $m=2$, $n=2$ pour le mode $m=3$). Par contre, le mode $m=4$ (Fig. III.7.1-12(f)), qui fait intervenir les états du continuum, est de type "pompage optique". Ici encore, tous les modes décrivent des transferts nets de populations par pompage optique entre les différents puits de potentiel.

FIG. III.7.1-12 : Structure des modes de relaxation impairs $m=0-4$ pour un potentiel de profondeur $U_0 = 500 E_R$. (a) Spectre d'énergie indiquant la présence de 14 états liés. (b-e) Modes "Lamb-Dicke". (f) Mode de type "pompage optique".



d. Conclusion

Le calcul des spectres Rayleigh nécessite une parfaite connaissance des propriétés dynamiques du milieu diffuseur. Or, la dynamique des mélasses optiques lin \perp lin présente une très grande richesse, qu'il est impossible d'aborder dans son ensemble. Il est donc nécessaire, au préalable à tout calcul de spectres, de caractériser précisément les propriétés des modes d'évolution susceptibles d'être excités par l'onde sonde. Ceci peut être fait par l'étude des propriétés de symétrie de la mélasse, ainsi que de celles du terme d'excitation de la sonde.

Dans le cas de la configuration de polarisation \parallel , seuls les modes "pairs", décrivant des modifications de populations identiques dans chacun des puits de potentiel, peuvent être excités par l'onde sonde. Ils sont associés au processus de chauffage de la mélasse et s'organisent en deux familles. L'une, de type "Lamb-Dicke", de taux de relaxation affectés par la localisation atomique, décrit les phénomènes de redistributions de populations entre états d'énergie liés à l'intérieur d'un même puits. L'autre, de type "diffusif", rend compte des processus de diffusion en impulsion des atomes et fait intervenir les états du continuum d'énergie. Les taux de relaxation des modes de diffusion sont sensibles au choix du nombre d'états de bandes utilisé pour les calculs.

Dans le cas de la configuration de polarisation \perp , seuls les modes "impairs", décrivant les transferts de populations entre puits de potentiel associés aux différents sous-niveaux Zeeman, peuvent être excités par l'onde sonde. Ils sont associés au processus de refroidissement "Sisyphé" de la mélasse, et s'organisent également en deux familles. L'une, de type "Lamb-Dicke", de taux de relaxation affectés par la localisation atomique, décrit les phénomènes de pompage optique à partir des états de bande liés. L'autre, de type "pompage optique", fait intervenir des processus de pompage optique entre états du continuum d'énergie. Le taux caractéristique de cette famille n'est donc autre que le taux de pompage optique γ_0 .

Les propriétés dynamiques de la mélasse sont maintenant caractérisées, conformément aux deux premiers critères de notre classification des processus Rayleigh. Il nous faut donc à présent nous consacrer aux différents points du troisième critère, et qui concernent la modification du milieu par l'onde sonde, ainsi que le mécanisme de diffraction des ondes pompes. Comme l'indiquent les expériences décrites au §III.4, la structure centrale des spectres de transmission à travers les mélasses optiques 1D lin \perp lin dépend fortement de la polarisation de l'onde sonde. Nous allons donc considérer successivement les deux cas limites de polarisation de la sonde \parallel et \perp (critère 3.b), et mettre ainsi en évidence deux types d'effets Rayleigh stimulés fondamentalement différents.

7.2. Configuration de polarisation II

La configuration de polarisation II est associée expérimentalement à une structure centrale très étroite, et de forme dispersive (§III.4). Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, cette géométrie est caractérisée par une très grande symétrie des modifications de populations des niveaux de bandes par la sonde, puisque les puits de potentiel $U_+^{(0)}$ et $U_-^{(0)}$ sont affectés de manière rigoureusement identiques. Nous allons étudier ici plus finement ces modifications de populations en montrant qu'elles sont dues à une modulation temporelle de la profondeur du potentiel lumineux induite par la sonde. Nous en déduirons un moyen simple de les caractériser, et montrerons ainsi qu'elles dépendent fortement de la profondeur des puits de potentiel (§III.7.2.a). Nous interpréterons ensuite la résonance Rayleigh du spectre de transmission comme un processus de diffraction vers l'arrière de l'onde pompe se propageant en sens opposé à la sonde, accompagné d'une rotation Faraday de sa polarisation sur le réseau d'orientation modulé temporellement par le faisceau sonde. Nous montrerons alors que l'existence de la résonance Rayleigh prouve l'ordre anti-ferromagnétique à longue distance de la mélasse optique (§III.7.2.b). Nous commenterons quelques spectres théoriques, en faisant ressortir les caractéristiques essentielles de l'effet Rayleigh (§III.7.2.c). Nous effectuerons finalement la classification de l'effet Rayleigh stimulé des mélasses 1D lin_Llin dans la configuration de polarisation II, en discutant son analogie avec l'effet "Rayleigh" des milieux moléculaires (§III.7.2.d).

a. Modification du milieu par l'onde sonde

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, la dynamique d'évolution des populations des différents niveaux d'énergie atomiques est très complexe dans le cas d'une mélasse lin_Llin. Il est donc illusoire d'espérer parvenir à une estimation *quantitative* des structures Rayleigh sans passer par le calcul numérique des spectres de transmission. Nous allons toutefois exposer ici une démarche permettant de prévoir *qualitativement* de nombreuses caractéristiques de la structure Rayleigh.

Nous cherchons tout d'abord à identifier le régime que souhaite imposer la sonde au milieu atomique, sans tenir compte des effets de réponse de la mélasse. Nous allons pour cela suivre une démarche semblable à celle employée aux §II.4.1.a et §II.4.2, en cherchant à déduire l'effet de la sonde sur le milieu à partir des propriétés (statiques) de la mélasse en présence des ondes pompes seules. Nous savons que cela suppose de décrire le rôle de l'onde sonde par une modulation temporelle lente d'une certaine caractéristique (polarisation, intensité) des ondes pompes, en fonction de laquelle on sait déterminer l'état du système. Nous partons donc du champ pompe créant la mélasse optique lin_Llin défini au §III.3 :

$$\vec{E}_0 = E_0 \left[e^{ikz} \vec{e}_x - i e^{-ikz} \vec{e}_y \right] e^{-i\omega t} + c.c. \quad (\text{III.7.2-1})$$

En présence de l'onde sonde d'amplitude εE_0 , et de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$, le champ total s'écrit :

$$\vec{E}_t = E_0 \left[\left(1 + \varepsilon e^{-i\delta t} \right) e^{ikz} \vec{e}_x - i e^{-ikz} \vec{e}_y \right] e^{-i\omega t} + c.c. \quad (\text{III.7.2-2})$$

Comme on peut le constater sur l'Eq. (III.7.2-2), le champ électrique total en présence de la sonde ne prend pas la forme du champ pompe seul, avec une seule de ses caractéristiques modulées temporellement à la fréquence δ . Il est aisé de trouver à cela une explication. Dans le cas des §II.4.1.a et §II.4.2, les caractéristiques géométriques (direction de propagation, polarisation) des ondes pompe et sonde étaient soit identiques, soit déductibles l'une de l'autre par une transformation de symétrie simple, permettant ainsi de réinclure l'influence de l'onde sonde dans l'expression du champ pompe. Or dans le cas d'une mélasse optique lin⊥lin utilisant *deux* ondes pompes, il est impossible de parvenir à une telle situation, puisque la présence d'une onde sonde *unique* brise de manière évidente la symétrie de la mélasse (ce qui apparaît d'ailleurs de façon très claire sur (III.7.2-2)). On ne peut donc pas espérer pouvoir directement répéter la démarche des §II.4.1.a et §II.4.2 en considérant la géométrie d'expérience pompe-sonde que nous avons utilisée, et schématisée sur la Fig. III.7.2-1(a). L'astuce consiste en fait à remarquer que les modifications du milieu apportées par l'onde sonde *unique* correspondent en bonne approximation à celles auxquelles conduiraient *deux* ondes sondes de caractéristiques bien choisies pour respecter la symétrie de la mélasse, et représentées sur la Fig. III.7.2-1(b) (cette analogie est discutée en annexe A.III). On se trouve alors dans une situation expérimentalement plus délicate (que nous n'avons d'ailleurs pas envisagée), mais présentant l'immense avantage du point de vue théorique de permettre d'évaluer aisément l'effet de l'onde sonde sur le milieu. Le champ total y prend en effet la forme :

$$\vec{E}_{II} = E_0 \left(1 + \frac{\varepsilon}{2} e^{-i\delta t} \right) \left[e^{ikz} \vec{e}_x - i e^{-ikz} \vec{e}_y \right] e^{-i\omega t} + c.c. \quad (\text{III.7.2-3})$$

qui, par comparaison avec (III.7.2-1), fait alors clairement apparaître l'influence de la sonde comme une modulation temporelle à la fréquence δ de l'amplitude des deux pompes. Il s'ensuit une modification des déplacements lumineux, ou de manière équivalente une modulation temporelle à la fréquence δ du paramètre sans dimension U_0/E_R .

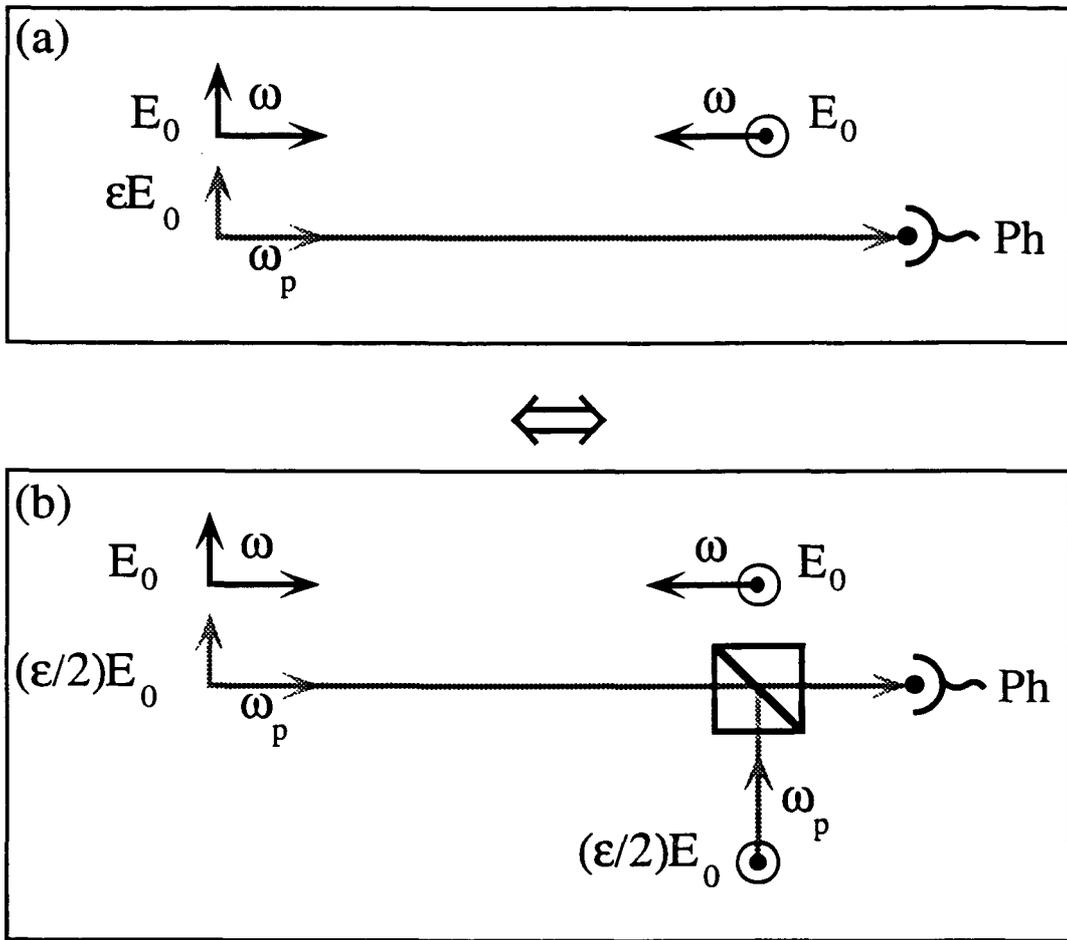


FIG. III.7.2-1 : Symétrisation de l'expérience pompe-sonde dans le cas de la configuration de polarisation II. (a) La présence d'une seule onde sonde d'amplitude ϵE_0 et ayant la même polarisation linéaire que l'onde pompe se propageant dans le même sens (cas expérimental réel), brise l'invariance de la mélasse par inversion spatiale selon Oz associée à la rotation d'angle $\pi/2$ des polarisations des champs. (b) Afin de rétablir cette propriété de symétrie, on envisage une situation expérimentale fictive utilisant deux ondes sondes d'amplitudes moitiées $(\epsilon/2)E_0$, de polarisations linéaires orthogonales, et parfaitement cohérentes entre elles. On peut alors montrer l'analogie de ces deux géométries d'expérience vis-à-vis des modifications de populations induites par le champ sonde dans le milieu.

On peut alors donner une image physique très claire de l'effet du champ sonde sur le milieu : celui-ci induit une modulation temporelle simultanée de la profondeur de tous les puits de potentiel. Nous avons ainsi représenté sur la Fig. III.7.2-2 l'évolution au cours du temps du potentiel lumineux en présence du champ sonde, les pointillés repérant les limites de celui-ci en présence des ondes pompes seules. Les puits de potentiel associés aux deux sous-niveaux Zeeman $|g, +\rangle$ et $|g, -\rangle$ ont donc à chaque instant des profondeurs identiques, mais cette profondeur varie au cours du temps et diffère de sa valeur (U_0) en l'absence du champ sonde. Le fait que les populations stationnaires des différents niveaux de bandes soient fonctions uniquement de la profondeur du potentiel (plus précisément du paramètre U_0/E_R), qui caractérise entièrement l'état de la mélasse à la limite séculaire considérée ici (voir §III.3), va alors nous permettre de déduire

directement les modifications de populations induites par le champ sonde. Pour ce faire, comme nous l'avons souligné au §II.4.1.a, il est tout d'abord nécessaire de s'assurer de la possibilité de suivi adiabatique par le milieu de la modulation temporelle de fréquence δ . Les taux de relaxation typiques de la mélasse étant au plus de l'ordre de Γ' , et compte tenu des caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé, nous pouvons déjà affirmer que δ sera au plus de l'ordre de Γ' . On voit alors que la condition d'adaptation adiabatique du milieu est équivalent à celle d'absence de cohérences dans l'état stationnaire, et se trouve donc remplie à la limite séculaire (voir annexe A.III).

L'hypothèse de suivi adiabatique étant vérifiée, on peut alors immédiatement caractériser le régime imposé par le champ sonde en l'interprétant comme une modification du vecteur $\Pi^{(0)}$ contenant l'ensemble des populations stationnaires des niveaux d'énergie, fonction unique du paramètre U_0/E_R , et équivalent de la variable statistique ρ du §II.2.2. Dans l'hypothèse où le milieu suivrait instantanément la perturbation due à la sonde, on aurait :

$$\Pi^{(0)} \rightarrow \Pi^{(0)} + \varepsilon \cos(\delta t) (U_0/E_R) \partial_{U_0/E_R} \Pi^{(0)} \quad (\text{III.7.2-4})$$

On peut aisément déduire la forme de $\partial_{U_0/E_R} \Pi^{(0)}$ à partir des courbes de populations des niveaux d'énergie en fonction du paramètre U_0/E_R , telles qu'elles sont représentées sur la Fig. III.3-2. On voit alors qu'il est nécessaire de considérer deux régimes. Le premier, correspondant grossièrement à $U_0/E_R \leq 60$ (limite des puits de potentiel peu profonds), est caractérisé par une forte *croissance* des populations des niveaux d'énergie les plus bas en fonction de U_0/E_R , et donc à une dérivée $\partial_{U_0/E_R} \Pi^{(0)}$ positive [Rq.III-24]. Ce régime est donc caractérisé par une tendance de la densité atomique au fond des puits à croître avec la profondeur de potentiel. Le second, défini par $U_0/E_R \geq 100$ (cas des puits de potentiel profonds), est lui associé à une *décroissance* des populations des niveaux d'énergie les plus bas en fonction de U_0/E_R , et donc à une dérivée $\partial_{U_0/E_R} \Pi^{(0)}$ négative. Ce régime correspond à une tendance de la densité atomique au fond des puits à décroître avec la profondeur de potentiel [Rq.III-25].

[Rq.III-24] Nous prenons ici uniquement en considération les niveaux d'énergie les plus bas, car on s'attend à ce qu'au voisinage de l'optimum du refroidissement où les atomes sont bien localisés, ces niveaux jouent un rôle prépondérant dans la dynamique du milieu. Nous montrerons d'ailleurs par la suite qu'eux seuls contribuent au transfert d'énergie du milieu vers l'onde sonde. Lorsque l'on parle de dérivée $\partial_{U_0/E_R} \Pi_{st}^{(0)}$ positive, il faut donc comprendre qu'elle est positive pour les niveaux de bandes les plus bas, car il est bien entendu qu'elle prend également des valeurs négatives pour les niveaux plus excités (conservation de la population totale).

[Rq.III-25] La frontière entre les deux régimes est assez difficile à définir. Le domaine $60 \leq U_0/E_R \leq 100$ correspond en fait à un régime de transition. Pour plus de détails, se reporter au §III.7.2.c.

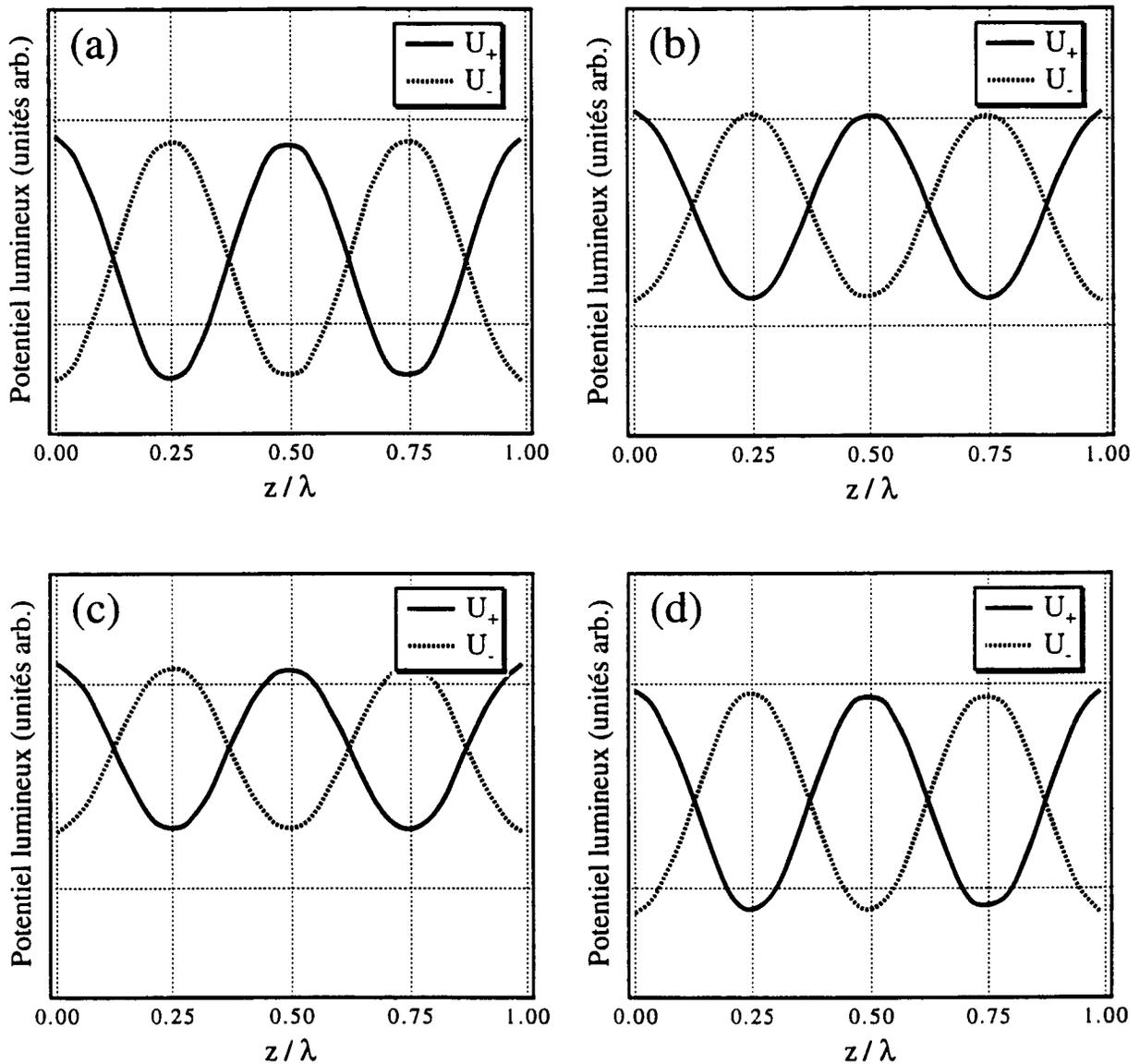


FIG. III.7.2-2 : Évolution temporelle du potentiel lumineux en présence du champ sonde dans la configuration de polarisation II. (a) $\delta t = \pi/8$. (b) $\delta t = 5\pi/8$. (c) $\delta t = 9\pi/8$. (d) $\delta t = 13\pi/8$. La grille indique la position des puits de potentiel en présence des seules ondes pompes. Le champ sonde modifie globalement la profondeur du potentiel lumineux, de manière identiques pour les puits U_+ et U_- .

Afin d'une part de confirmer et d'illustrer cette interprétation des modifications de populations par le champ sonde, et d'autre part de parvenir à estimer un taux effectif γ_{eff} de réponse du milieu à la modulation temporelle de fréquence δ , nous allons étudier plus précisément la structure des modifications de populations imposées par la sonde dans les deux cas limites considérés au §III.7.1.b pour l'étude des modes dynamiques de la mélasse. Nous considérons tout d'abord le cas $U_0/E_R = 20$ (potentiel lumineux très peu profond), et nous représentons sur la Fig. III.7.2-3 les modifications de populations imposées par l'onde sonde dans un milieu de

temps de réponse infiniment court, telles qu'elles sont issues d'un calcul numérique complet incluant les 50 premiers niveaux de bandes. On y constate immédiatement que les modifications de populations sont de loin les plus importantes pour les niveaux d'énergie les plus bas. En outre, conformément à la Fig. III.3-2 et à l'Eq. (III.7.2-4), les populations des niveaux liés augmentent, tandis que celles des niveaux plus excités, moins affectées par l'effet du champ sonde, diminuent (noter la structure complexe de ces modifications au voisinage du sommet des puits de potentiel). La comparaison avec la Fig. III.7-3 montre en outre une différence très importante entre les modifications de populations imposées par la sonde, et les modes propres dynamiques de diffusion de la mélasse. Ceci signifie qu'un grand nombre de modes dynamiques vont être excités par la sonde, et rend délicate l'estimation d'un taux effectif de relaxation du milieu. Nous considérerons simplement qu'en raison de la structure des modes d'évolution, et des modifications de populations induites par la sonde, γ_{eff} correspondra à un taux de diffusion en impulsion, dont on a vu qu'ils étaient très faibles, et notamment beaucoup plus petits que les taux de relaxation individuels des populations des niveaux de vibration liés.

Nous considérons à présent le cas des puits de potentiel très profonds. Nous avons représenté sur la Fig. III.7.2-4 la structure du régime imposé par le champ sonde dans le cas $U_0/E_R = 500$, correspondant aux modes dynamiques de la Fig. III.7.1-4. On constate à nouveau une modification importante des populations des niveaux liés, mais correspondant cette fois à une *diminution* de populations au profit des états plus excités, conformément à l'Eq. (III.7.2-4) et à la Fig. III.3-2 (que l'on peut facilement extrapoler jusqu'à $U_0/E_R = 500$). La comparaison des Figs III.7.1-4 et III.7.2-4 montre cette fois une correspondance satisfaisante, indiquant que seul un faible nombre de modes dynamiques seront excités par la sonde, le taux de relaxation de ces modes (que nous retiendrons pour γ_{eff}) étant de l'ordre de ceux des populations des premiers niveaux de vibration, affectés par l'effet Lamb-Dicke.

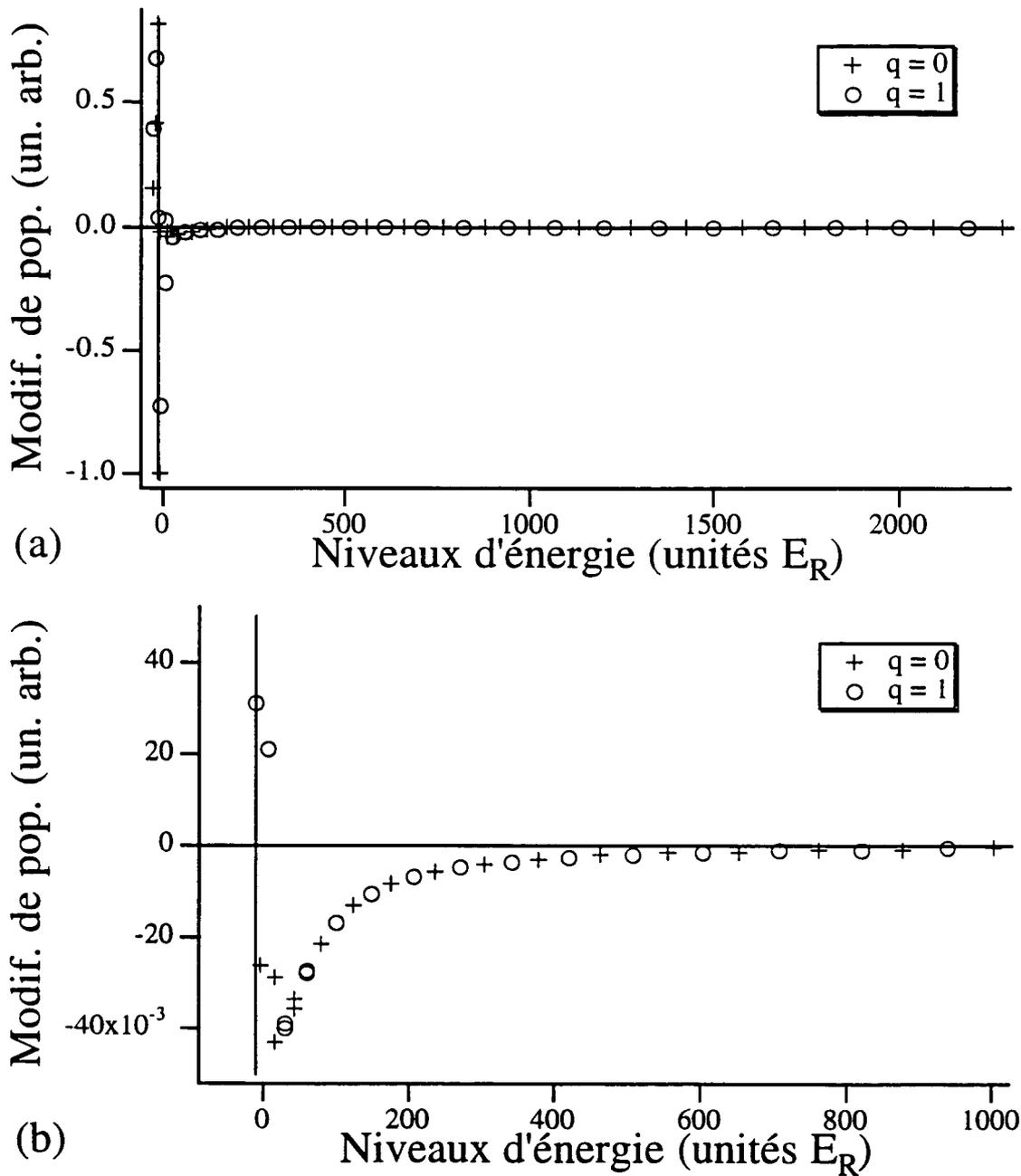


FIG. III.7.2-3 : Structure du régime imposé dans le milieu par l'onde sonde dans le cas d'un potentiel lumineux de profondeur $U_0 = 20 E_R$. (a) Modifications de populations des 50 premiers états de bandes montrant que les niveaux d'énergie les plus bas sont plus fortement affectés par la sonde que les niveaux quasi-libres. (b) Agrandissement de la Fig. III.7.2-3(a) mettant en évidence la structure des modifications de populations des états quasi-libres, qui deviennent négligeables pour les états les plus excités (contrairement à la structure des modes dynamiques de la Fig. III.7.1-3). Les conditions du calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.7.1-3.

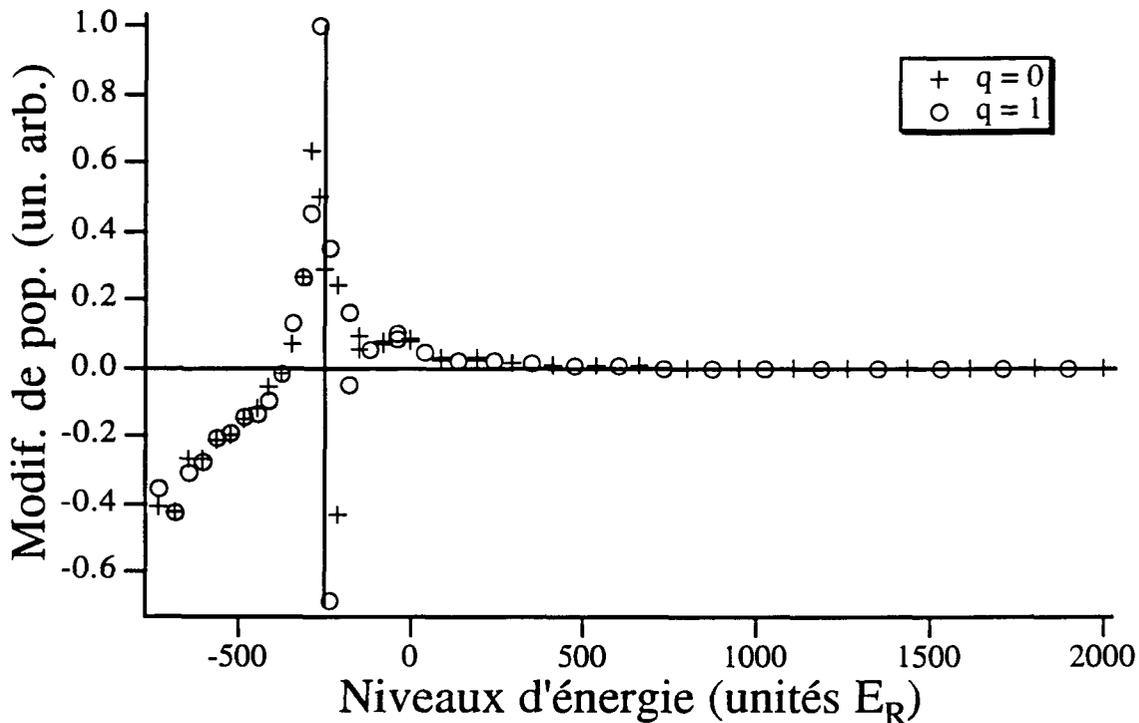


FIG. III.7.2-4 : Structure du régime imposé dans le milieu par l'onde sonde dans le cas d'un potentiel lumineux de profondeur $U_0 = 500 E_R$. On constate que les niveaux d'énergie les plus bas sont dépeuplés par la sonde au profit des niveaux plus excités, conformément aux caractéristiques de la Fig. III.3-2. Les conditions du calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.7.1-4.

Le taux de relaxation effectif γ_{eff} du milieu étant à présent estimé dans les deux régimes nous intéressant ($\gamma_{\text{eff}} \approx$ taux de diffusion pour les potentiels peu profonds, $\gamma_{\text{eff}} \approx$ taux de relaxation des niveaux vibrationnels les plus bas pour les puits profonds), il est possible de prendre en compte l'influence du temps de réponse du milieu à l'excitation du champ sonde, qui conduit à modifier l'expression (III.7.2-4) selon (voir §II.4.1.a) :

$$\Pi^{(0)} \rightarrow \Pi^{(0)} + \varepsilon (U_0/2E_R) \partial_{U_0/E_R} \Pi^{(0)} \left[\frac{\gamma_{\text{eff}}}{\gamma_{\text{eff}} - i\delta} e^{-i\delta t} + \text{c.c.} \right] \quad (\text{III.7.2-5})$$

Ainsi, en présence du champ sonde, l'état de la mélasse optique est caractérisé par des populations des états de Bloch $|n, q, \mu\rangle$ différant de leur valeur stationnaire $\pi_{n, q, \mu}^{(0)}$ par un terme modulé à la fréquence δ :

$$\pi_{n, q, \mu}^{(0)} \rightarrow \pi_{n, q, \mu}^{(0)} + \varepsilon (\pi_{n, q, \mu}^{(1)} e^{-i\delta t} + \text{c.c.}) \quad (\text{III.7.2-6})$$

avec :

$$\pi_{n,q,\mu}^{(1)} = \frac{\gamma_{\text{eff}}}{\gamma_{\text{eff}} - i\delta} (U_0/2E_R) \partial_{U_0/E_R} \pi_{n,q,\mu}^{(0)} \quad (\text{III.7.2-7})$$

b. Mécanisme de diffraction des ondes pompes

Ayant identifié la façon dont le champ sonde module temporellement les populations des niveaux de bandes, nous allons à présent étudier le mécanisme par lequel ces variations de populations conduisent au transfert de puissance vers l'onde sonde. La densité de puissance transférée s'exprime en portant (III.7.2-6) dans l'Eq. (R.5-6) :

$$\mathcal{P} = N \hbar \omega_{S_0} \Delta \sum_{n,q,\mu} \text{Im} \left[\pi_{n,q,\mu}^{(1)} \langle n,q,\mu | \wp_{\parallel} | n,q,\mu \rangle \right] \quad (\text{III.7.2-8})$$

où nous avons négligé la largeur naturelle du niveau excité devant le désaccord à résonance des lasers (le régime oscillant des mélasses lin⊥lin étant un régime de grand désaccord). En utilisant l'expression (III.7.1-4) de l'opérateur \wp_{\parallel} , on peut réexprimer (III.7.2-8) sous la forme suggestive suivante :

$$\mathcal{P} = \frac{2}{3} N \hbar \omega_{S_0} \Delta \sum_{n,q,\mu} \text{Im} \left[\pi_{n,q,\mu}^{(1)} \left(\langle n,q,\mu | I | n,q,\mu \rangle - \langle n,q,\mu | e^{-2ikz} J_z / \hbar | n,q,\mu \rangle \right) \right] \quad (\text{III.7.2-9})$$

où l'on distingue deux contributions au transfert de puissance du milieu vers la sonde, ayant une signification physique claire.

Le premier terme, faisant intervenir l'opérateur identité I, rend compte de la diffraction vers l'avant du faisceau pompe se propageant dans la même direction que l'onde sonde (terme indépendant de z), sur le réseau de densité atomique modulé temporellement. On constate immédiatement sur (III.7.2-9) qu'en raison de la conservation de la population atomique totale :

$$\sum_{n,q,\mu} \pi_{n,q,\mu}^{(1)} = 0 \quad (\text{III.7.2-10})$$

cet effet ne contribue pas au transfert de puissance.

Le second terme de (III.7.2-9), impliquant l'opérateur J_z (moment cinétique selon Oz), décrit le processus de diffraction vers l'arrière de l'onde pompe se propageant dans la direction opposée à la sonde (terme dépendant de z), sur le réseau d'orientation modulé temporellement par la sonde. L'origine de ce réseau est lié à la redistribution de populations entre les différents niveaux de bande par la sonde, qui modifie la densité d'orientation du milieu $M_{\text{tot}}^{(0)}$ selon :

$$M_{\text{tot}}^{(0)}(z) \rightarrow M_{\text{tot}}^{(0)}(z) + \varepsilon (M_{\text{tot}}^{(1)}(z) e^{-i\delta z} + \text{c. c.}) \quad (\text{III.7.2-11})$$

avec [Rq.III-26] :

$$M_{\text{tot}}^{(1)}(z) = \frac{\gamma_{\text{eff}}}{\gamma_{\text{eff}} - i\delta} (U_0/2E_R) \partial_{U_0/E_R} M_{\text{tot}}^{(0)}(z) \quad (\text{III.7.2-12})$$

L'opération de dérivation par rapport à U_0/E_R commutant avec l'opérateur \mathcal{T} , la relation (III.7.2-12) montre que la modulation temporelle d'orientation induite par la sonde possède le même ordre anti-ferromagnétique que la mélasse (Fig. III.7.2-5). Nous allons à présent montrer que cette propriété est à l'origine du transfert de puissance des atomes vers l'onde sonde. Considérons la diffraction vers l'arrière de l'onde pompe polarisée orthogonalement à la sonde sur la modulation temporelle d'orientation, en négligeant tout d'abord le déphasage des ondes dû à la propagation. En raison de la structure anti-ferromagnétique de la modulation d'orientation, la phase de l'onde diffractée varie de π tous les $\lambda/4$, la rotation Faraday de l'onde pompe ayant un sens défini par le signe de l'orientation modulée. Incluons à présent l'effet du déphasage lié à la propagation. Entre deux plans de diffraction distants de $\lambda/4$ (matérialisés par le fond des puits de potentiel où les atomes sont localisés), la phase de l'onde pompe varie de $\pi/2$, de même que la phase de l'onde diffractée. Le déphasage accumulé par effet de propagation entre deux plans de diffraction est donc de π , ce qui compense exactement le déphasage lié à la rotation Faraday, et conduit donc à une interférence constructive des contributions des différents plans de diffraction (Fig. III.7.2-5). Insistons sur le fait que l'interférence constructive vers l'arrière repose sur l'existence de plans de diffraction régulièrement espacés de $\lambda/4$, c'est-à-dire sur une forte localisation atomique. Ainsi, dans le cas d'un atome occupant un état quasi-libre délocalisé, la diffraction de l'onde pompe vers l'arrière peut se produire en n'importe quel point de l'espace avec la même probabilité. Le signal de diffraction vers l'arrière résulte alors de la somme d'un ensemble de contributions ayant des déphasages variant continûment sur une large plage, et est donc proche de zéro.

L'existence d'un transfert de puissance entre les atomes et l'onde sonde, et donc d'une structure Rayleigh stimulée, prouve donc d'une part que l'onde sonde modifie sensiblement les populations des états localisés au fond des puits de potentiel, et d'autre part que la modulation temporelle d'orientation par la sonde a une structure anti-ferromagnétique. Ces propriétés

[Rq.III-26] Le fait que la sonde modifie adiabatiquement les fonctions d'onde des états de vibration contribue également à la modification de la densité d'orientation de la mélasse. Toutefois, cet effet n'implique pas l'excitation du milieu atomique et ne contribue donc pas à la résonance Rayleigh centrale. Il sera négligé ici et l'opération de dérivation par rapport à U_0/E_R ne portera donc que sur les populations des niveaux d'énergie, et non pas sur les niveaux eux-mêmes.

apparaissent d'ailleurs clairement sur l'expression de la densité de puissance transférée (III.7.2-9), que l'on peut réexprimer plus simplement en utilisant les propriétés de symétrie du système vis-à-vis de \mathcal{T} , sous la forme :

$$\mathcal{P} = \frac{2}{3} N \hbar \omega s_0 \Delta \sum_{n,q} \text{Im} \left[\pi_{n,q,-}^{(1)} \langle n,q,- | e^{-2ikz} | n,q,- \rangle \right] \quad (\text{III.7.2-13})$$

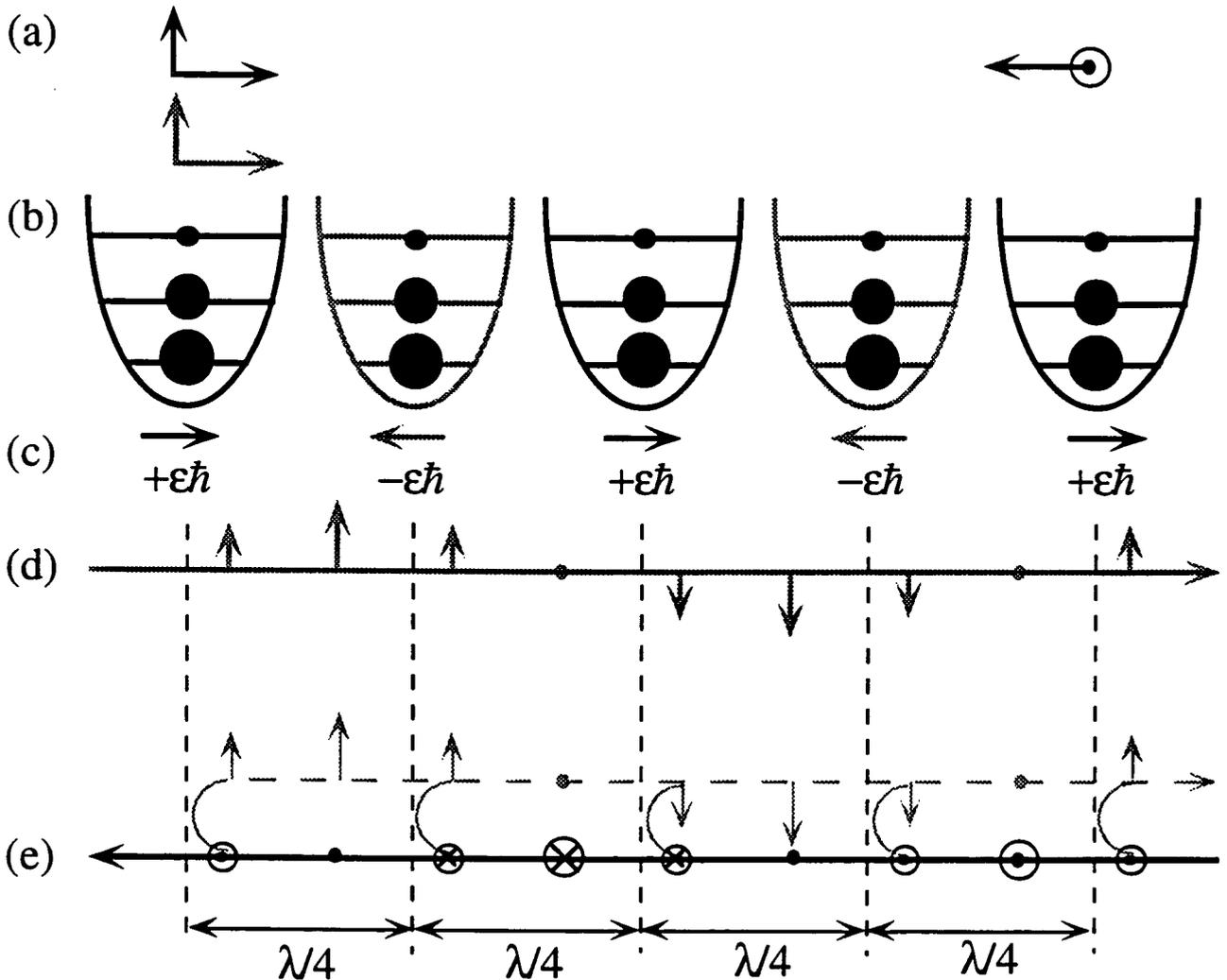


FIG. III.7.2-5 : Mécanisme de diffraction des ondes pompes sur le réseau d'orientation modulé temporellement par la sonde. Dans la configuration de polarisation II (a), le champ sonde induit des modifications de populations identiques dans chaque puits de potentiel (b), se traduisant par une modulation temporelle à la fréquence δ de l'orientation du milieu. La partie modulée de l'orientation, schématisée par les flèches au bas des puits de potentiel (c) est d'ordre $\epsilon\hbar$, et possède la même structure anti-ferromagnétique que la mélasse en l'absence de sonde. (d-e) Du fait du changement de signe de l'orientation modulée tous les $\lambda/4$, la rotation Faraday de la polarisation de l'onde pompe se propageant en sens opposé à la sonde (trait gris continu) change de sens à chaque plan de diffraction, matérialisé par un trait vertical pointillé, induisant un déphasage de π pour le champ diffracté (trait pointillé gris). Ce déphasage est toutefois compensé par la propagation libre des champs entre les plans de diffraction distants de $\lambda/4$.

Cette densité de puissance fait intervenir la sommation sur les différents états de bandes d'un puits donné, de termes proportionnels d'une part à la modification de population du niveau par la sonde ($\pi_{n,q,-}^{(1)}$), et d'autre part la valeur moyenne de la fonction $\exp(-2ikz)$ sur l'étendue de la fonction d'onde, quantité qui n'est importante que pour les niveaux d'énergie les plus bas [Rq.III-27]. Il apparaît donc dans l'expression de la densité de puissance transférée (III.7.2-13) un phénomène de *sélection des niveaux les plus localisés*. Cette caractéristique est très importante pour comprendre la forme des résonances Rayleigh, car elle favorise considérablement les modes dynamiques fortement couplés aux états d'énergie les plus bas, dont les taux de relaxation "Lamb-Dicke" sont les plus faibles. Elle permet également, en utilisant l'estimation (III.7.2-7) des modifications de populations des niveaux de bande, de réexprimer en bonne approximation la densité de puissance transférée vers la sonde (III.7.2-13) sous la forme :

$$\mathcal{P} \approx \frac{N\omega U_0^2}{2E_R} \left(\frac{-\delta\gamma_{\text{eff}}}{\delta^2 + \gamma_{\text{eff}}^2} \right) \sum_{\substack{\text{états localisés} \\ (n,q)}} \partial_{U_0/E_R} \pi_{n,q,-}^{(0)} \quad (\text{III.7.2-14})$$

Cette densité de puissance est donc proportionnelle à la dérivée par rapport à U_0/E_R de la population totale des niveaux d'énergie les plus bas.

Nous avons pour l'instant montré que l'existence d'une structure Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel donnait des renseignements intéressants sur la modification du milieu par l'onde sonde. On peut alors se demander quelles informations il est possible d'en tirer sur les propriétés de la mélasse optique *en l'absence de sonde*. D'après l'Eq. (III.7.2-12), la modulation temporelle de la densité d'orientation par l'onde sonde est proportionnelle à la dérivée de la densité d'orientation du milieu en l'absence de sonde par rapport au paramètre sans dimension U_0/E_R . Or l'opération de dérivation par rapport à U_0/E_R commute avec l'opérateur \mathcal{T} . En conséquence, les quantités $M_{\text{tot}}^{(0)}$ et $M_{\text{tot}}^{(1)}$ sont nécessairement de *même* symétrie vis-à-vis de \mathcal{T} . Puisque l'existence de la raie Rayleigh démontre l'ordre anti-ferromagnétique de $M_{\text{tot}}^{(1)}$, autrement dit son invariance par \mathcal{T} , elle démontre également l'invariance de $M_{\text{tot}}^{(0)}$ par \mathcal{T} , et finalement :

La présence d'une résonance Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel est une preuve de l'ordre anti-ferromagnétique dans la mélasse 1D lin_Llin.

[Rq.III-27] L'importance de la structure anti-ferromagnétique de la modulation d'orientation du milieu n'apparaît pas de façon explicite dans cette expression du transfert de puissance. C'est en fait elle qui rend possible l'utilisation de la transformation \mathcal{T} permettant de calculer \mathcal{P} par sommation sur les états de bandes associés à *un seul* sous-niveau Zeeman.

Nous constatons également sur l'expression (III.7.2-14) qu'au voisinage de $U_0/E_R = 60$, où le signe des dérivées des populations des niveaux de vibration par rapport à U_0/E_R change, la structure Rayleigh de forme dispersive doit s'inverser. On peut donc considérer que :

Le signe de la résonance Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel caractérise la dépendance des populations des niveaux de vibration en fonction de la profondeur des puits du potentiel lumineux

Par contre, il semble hors de portée de déduire du spectre Rayleigh les *valeurs numériques* des populations stationnaires des niveaux de vibration, qui permettraient une mesure de la température de la mélasse [Rq.III-28].

c. Allure du spectre de transmission

Nous présentons ici quelques exemples de spectres Rayleigh calculés numériquement pour diverses valeurs du paramètre U_0/E_R , et nous en interprétons les caractéristiques à l'aide du modèle simple développé précédemment. Nous considérons tout d'abord les deux valeurs de U_0/E_R retenues au §III.7.2.a pour illustrer la méthode d'évaluation des modifications de populations par l'onde sonde. Nous avons représenté sur la Fig. III.7.2-6 la dépendance du gain Rayleigh de la sonde en fonction du paramètre sans dimension δ/Γ' pour ces deux valeurs de U_0/E_R [Rq.III-29]. Nous constatons alors les propriétés suivantes :

- *Les deux structures Rayleigh ont des signes opposés.* Cette propriété est liée au changement de signe des dérivées des populations des niveaux localisés en fonction de U_0/E_R au voisinage de $U_0 \approx 60 E_R$ (positive avant, négative après), qui comme nous l'avons précédemment souligné, s'accompagne d'un renversement de la résonance Rayleigh (voir Eq. (III.7.2-14)).
- *Ces structures ont des formes différentes.* Ainsi, la résonance Rayleigh de la Fig. III.7.2-6(a) (puits peu profonds) présente une pente centrale très abrupte, caractéristique des taux de relaxation des modes de diffusion, ainsi que des ailes beaucoup plus larges, correspondant à des taux de relaxation de l'ordre de Γ' . La structure de la Fig. III.7.2-6(b) possède quant à elle une forme dispersive de largeur très réduite par rapport à Γ' , caractéristique d'un taux de relaxation de mode "Lamb-Dicke"

[Rq.III-28] Cette mesure est possible par analyse du spectre de fluorescence de la mélasse (voir [Jes92]).

[Rq.III-29] Le choix de ce paramètre évite de préciser la valeur du désaccord à résonance, qui doit être choisi de manière à permettre l'utilisation de l'approximation séculaire.

($m = 3$). Ces résultats sont en accord satisfaisant avec l'estimation des taux γ_{eff} donnée au §III.7.2.a. L'implication d'un très grand nombre de modes dynamiques dans la réponse de la mélasse à la limite des puits de potentiel peu profonds, que nous avons mis en évidence au §III.7.2.a, se trouve confirmée ici par la grande complexité de la structure Rayleigh de la Fig. III.7.2-6(a), qu'il n'est donc pas possible de décrire de façon satisfaisante sous la forme (III.7.2-14). Par contre, dans le cas des potentiels profonds, la résonance Rayleigh est donnée en bonne approximation par l'expression (III.7.2-14), bien que l'estimation précise de γ_{eff} s'avère *a priori* difficile.

- *Les amplitudes des résonances sont comparables* malgré le grand écart dans les valeurs de U_0/E_R . Ceci est lié au fait que la dérivée des populations des niveaux localisés en fonction de U_0/E_R est beaucoup plus importante à la limite des puits de potentiel peu profonds que pour les puits de grande profondeur (voir Fig. III.3-2) [Rq.III-30].
- *Les résonances sont dissymétriques* par rapport à l'origine. Ceci est dû essentiellement au choix d'un désaccord à résonance fini ($\Delta = -10 \Gamma$) pour le calcul du spectre [Rq.III-31].

[Rq.III-30] Notons également que l'amplitude des résonances Rayleigh stimulées est trouvée par le calcul typiquement 30 fois inférieure à celle des résonances Raman stimulées. Or les résultats expérimentaux font apparaître une structure centrale de plus grande amplitude. Ceci est essentiellement lié à l'emploi dans les expériences d'un angle non nul entre pompes et sonde, qui se traduit par l'apparition au centre des spectres d'une résonance supplémentaire de type Raman induite par le recul.

[Rq.III-31] Les modes de relaxation-oscillation contribuant à la structure Rayleigh conduisent en principe à une dissymétrie supplémentaire de la raie centrale. On peut toutefois s'assurer que les valeurs propres de tels modes ont une partie imaginaire au moins inférieure de deux ordres de grandeur à la partie réelle. La dissymétrie de la raie Rayleigh liée aux modes de relaxation-oscillation est donc négligeable.

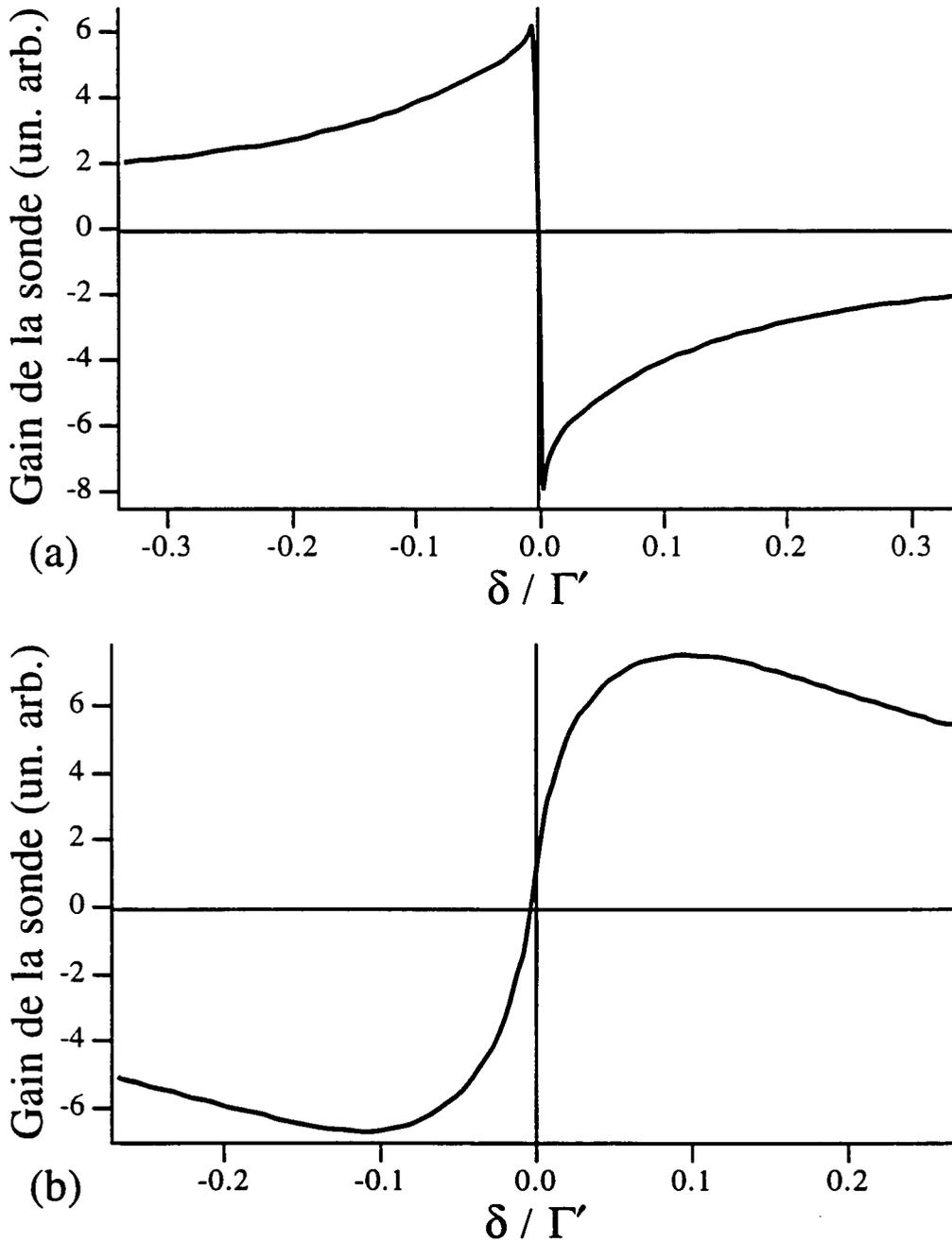


FIG. III.7.2-6 : Gain Rayleigh de l'onde sonde en fonction du paramètre sans dimension δ/Γ' . (a) Cas des puits de potentiel très peu profonds $U_0/E_R = 20$. La structure Rayleigh présente une pente très abrupte, liée aux modes de diffusion, ainsi que des ailes plus larges, correspondant à des taux de relaxation de l'ordre de Γ' . (b) Cas des puits de potentiel très profonds $U_0/E_R = 500$. La structure Rayleigh présente une forme dispersive de largeur donnée par le taux de relaxation effectif de la population d'un niveau vibrationnel lié (associé à un mode de type "Lamb-Dicke"). Le gain de la sonde est exprimé dans les mêmes unités arbitraires pour (a) que pour (b).

Remarque

On peut également se demander si la structure Rayleigh de la Fig. III.7.2-6(a) a un véritable sens physique, alors que les taux des modes dynamiques de type diffusifs sont sensibles au nombre de niveaux de bande considérés (voir §III.7.1.a). En fait, la structure précise des modes de diffusion n'est pas fondamentalement importante pour la forme de la résonance Rayleigh. Ce qui importe avant tout est la stabilité du terme d'excitation par l'onde sonde, qui détermine entièrement les caractéristiques de la résonance. Or au vu de la Fig. III.7.2-3, on constate qu'il n'y a pas lieu de redouter une instabilité de ce terme, puisqu'il présente une coupure marquée au niveau des états très excités, ce qui n'est pas du tout le cas des modes de diffusion de la Fig. III.7.1-3. En pratique, on constate que les spectres Rayleigh présentent une bonne stabilité numérique vis-à-vis du nombre de bandes considéré à partir de la valeur $U_0/E_R=20$. Pour des valeurs inférieures, il devient impossible de stabiliser numériquement le spectre, dont la largeur diminue sans cesse en fonction du nombre de bandes retenues. De toute façon, il faut garder à l'esprit que le formalisme théorique utilisé ici n'est pas adapté au cas des puits de potentiel trop peu profonds, qui nécessite la prise en compte supplémentaire des mécanismes de refroidissement Doppler.

Une des caractéristiques les plus intéressantes des structures Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel est le lien entre le signe de ces structures et celui de la dérivée des populations des niveaux de vibration les plus bas en fonction de U_0/E_R (Eq. (III.7.2-14)). Comme nous l'avons déjà signalé, la frontière entre les deux régimes de croissance et décroissance des populations en fonction de U_0/E_R se situe aux alentours de $U_0/E_R = 60$. Afin d'illustrer la transition entre ces deux régimes, nous avons représenté sur la Fig. III.7.2-7 le gain Rayleigh de l'onde sonde pour les valeurs 40, 60, 80, et 100 de U_0/E_R . On constate ainsi que la structure Rayleigh passe par un stade intermédiaire où coexistent des contributions de signes opposés. Nous nous sommes assurés qu'au début du renversement (U_0/E_R croissant), c'est bien la population du niveau de vibration fondamental qui contribue majoritairement au changement de signe de la structure, puis les autres niveaux contribuent progressivement avec le même signe, conformément aux courbes de la Fig. III.3-2. On remarque également sur la Fig. III.7.2-7 que le renversement de la structure Rayleigh correspond à un changement du comportement dynamique du milieu vis-à-vis de l'excitation par l'onde sonde. On constate en effet que le signe de la résonance est très bien corrélé à sa largeur, caractéristique du type de modes dynamiques excités. Lors du changement de régime, le milieu passe ainsi d'un comportement de type diffusif (potentiels peu profonds) où les

niveaux quasi-libres jouent un rôle important, à un comportement de type “Lamb-Dicke” (potentiels profonds) où la dynamique du système est réductible à celle de ses niveaux localisés. On constate de plus que la disparition complète du régime diffusif correspond à $U_0/E_R \approx 100$, qui n'est autre que l'optimum de refroidissement de la mélasse [Cas92]. On remarque donc qu'en-dessous du seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler le système a un comportement diffusif, et au-dessus de ce seuil un comportement “Lamb-Dicke”.

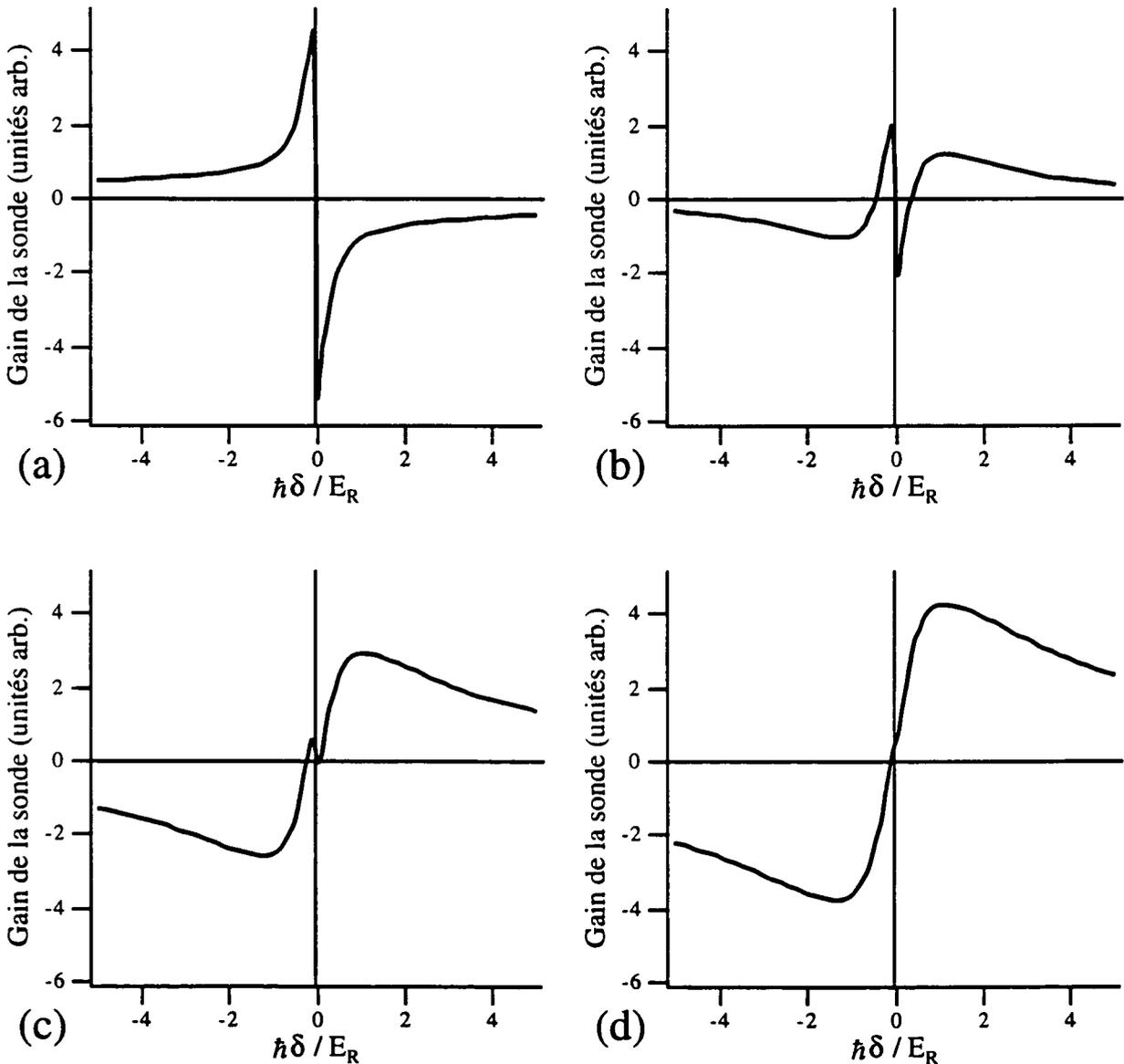


FIG. III.7.2-7 : Renversement de la structure Rayleigh stimulée lors du passage entre les régimes de dérivées positives et négatives des populations des niveaux de vibration en fonction de U_0/E_R . (a) $U_0/E_R = 40$ (puits de potentiel peu profonds). (b) $U_0/E_R = 60$: début du renversement. (c) $U_0/E_R = 80$: fin du renversement. (d) $U_0/E_R = 100$ (puits de potentiel profond, optimum du refroidissement). On constate que le renversement de la résonance Rayleigh est corrélé à l'apparition des modes de diffusion dans la réponse dynamique du milieu à l'excitation de l'onde sonde.

d. Caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé

Nous sommes à présent en mesure de résumer les caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé des mélasses optiques 1D lin⊥lin dans la configuration de polarisation II en répondant aux différents critères de classification énoncés au chapitre II. Comme nous l'avons montré précédemment, l'origine de cet effet est lié à la modulation en phase par l'onde sonde de la profondeur des puits de potentiel U_- et U_+ , qui engendre une modulation de la densité atomique ou, de manière équivalente, de la densité d'orientation correspondant à un ordre spatial de type anti-ferromagnétique. Nous avons également mis en évidence l'existence de deux régimes caractérisés par une tendance de la densité atomique au fond des puits à croître ou à décroître avec la profondeur de potentiel. Ces différentes propriétés ne sont donc pas sans rappeler celles des effets "Rayleigh" électrostrictifs (accumulation de densité aux endroits de champ intense) et thermodiffusifs (accumulation de densité aux endroits de champ faible) des milieux moléculaires, qui sont également basés sur une modulation de la densité moléculaire par l'onde sonde, et conduisent à des spectres analogues à ceux étudiés ici (voir §II.3.2). On ne saurait toutefois pousser l'analogie trop loin car d'une part les mécanismes de modification de la densité, et d'autre part les processus de relaxation impliqués ont des origines physiques fondamentalement différentes dans les deux situations.

Nous distinguerons finalement deux effets Rayleigh dans la configuration de polarisation II, qui diffèrent fortement par les caractéristiques des processus de relaxation impliqués, la forme et le signe de la résonance. Par référence aux modes dynamiques excités dans chacun de ces cas, nous les baptiserons effet Rayleigh stimulé lin⊥lin (II) diffusif et effet Rayleigh stimulé lin⊥lin (II) "Lamb-Dicke". Leurs caractéristiques sont résumées dans les Tableaux III.7.2-1 et III.7.2-2.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Mélasse optique lin_Llin Sous le seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler	Atomes Transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$	Deux ondes se propageant en sens opposés, de même intensité et même fréquence Grand désaccord rouge Faible saturation $U_0/E_R \leq 60$
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
Inférieur aux taux de relaxation effectifs des niveaux de vibration	Diffusion en impulsion impliquant les états quasi-libres	Origine du mécanisme de relaxation
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Modulation en phase de la profondeur des puits de potentiel U_+ et U_-	Polarisation linéaire \parallel à celle de l'onde pompe se propageant dans le même sens. Angle nul entre pompes et sonde	Diffraction vers l'arrière avec rotation Faraday de l'onde pompe se propageant en sens opposé

Tableau III.7.2-1 : Caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé lin_Llin (\parallel) diffusif dans le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Mélasse optique lin⊥lin Au-delà du seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler	Atomes Transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$	Deux ondes se propageant en sens opposés, de même intensité et même fréquence Grand désaccord rouge Faible saturation $U_0/E_R \geq 100$
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
Taux de relaxation effectifs des niveaux de vibration	Égalisation des populations des niveaux liés par transitions entre états d'un même puits (chauffage de la mélasse)	Origine du mécanisme de relaxation.
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Modulation en phase de la profondeur des puits de potentiel U_+ et U_-	Polarisation linéaire à celle de l'onde pompe se propageant dans la même direction. Angle nul entre pompes et sonde	Diffraction vers l'arrière avec rotation Faraday de l'onde pompe se propageant en sens opposé

Tableau III.7.2-2 : Caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé lin⊥lin (||) "Lamb-Dicke" dans le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$.

7.3. Configuration de polarisation \perp

Dans le cas de la configuration de polarisation \perp (l'onde sonde a une polarisation linéaire orthogonale à celle de l'onde pompe se propageant dans le même sens qu'elle), la résonance centrale observée expérimentalement présente une pente très abrupte et des ailes plus larges lui donnant une forme de falaise (§III.4). Comme nous l'avons vu au §III.7.1, cette géométrie se caractérise par une brisure de symétrie entre les puits de potentiel $U_+^{(0)}$ et $U_-^{(0)}$ puisque les modifications de populations des niveaux de bandes induites par la sonde dans ces potentiels sont exactement opposées, traduisant un transfert net de populations entre les différents puits. Nous allons étudier maintenant plus précisément ces modifications de populations en montrant qu'elles résultent de la modulation temporelle en opposition de phase de la profondeur des potentiels $U_+^{(0)}$ et $U_-^{(0)}$ par le champ sonde (§III.7.3.a). Nous mettrons ensuite en évidence l'existence de deux contributions distinctes à la résonance Rayleigh du spectre de transmission. La première correspond à un processus de diffraction de Bragg vers l'arrière de l'onde pompe se propageant dans la direction opposée à la sonde sur le réseau de densité modulé temporellement par la sonde. La seconde correspond à la rotation Faraday de l'onde pompe se propageant dans le même sens que la sonde par l'orientation moyenne induite dans le milieu par la sonde (§III.7.3.b). Nous commenterons alors quelques spectres théoriques, en faisant ressortir les principales caractéristiques de l'effet Rayleigh (§III.7.3.c). Nous terminerons par la classification de l'effet Rayleigh stimulé des mélasses 1D lin_Llin dans la configuration de polarisation \perp (§III.7.3.d).

a. Modification du milieu par l'onde sonde

Nous suivons ici une démarche analogue à celle du paragraphe précédent, en essayant d'estimer de manière *qualitative* les modifications de populations des différents niveaux de bandes induites dans le milieu par l'onde sonde. Comme précédemment, nous cherchons tout d'abord à identifier le régime qu'imposerait la sonde au milieu atomique dans le cas d'une réponse instantanée de la mélasse. Nous essayons pour cela de faire apparaître l'influence du faisceau sonde sur le milieu comme une modulation temporelle de certaines caractéristiques du champ pompe (III.7.2-1) que l'on peut réexprimer dans la base $\bar{e}_{\pm 1} = \mp(\bar{e}_x \pm i\bar{e}_y)/\sqrt{2}$ des polarisations circulaires σ^+ et σ^- :

$$\bar{E}_0 = \sqrt{2} E_0 [\cos(kz)\bar{e}_{-1} - i\sin(kz)\bar{e}_{+1}]e^{-i\omega t} + \text{c.c.} \quad (\text{III.7.3-1})$$

En présence de l'onde sonde d'amplitude εE_0 , et de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$, le champ total est de la forme :

$$\bar{E}_I = \sqrt{2} E_0 \left[\left(\cos(kz) + \frac{\varepsilon}{2} e^{ikz - i\delta t} \right) \bar{e}_{-1} - i \left(\sin(kz) + i \frac{\varepsilon}{2} e^{ikz - i\delta t} \right) \bar{e}_{+1} \right] e^{-i\omega t} + c.c. \quad (\text{III.7.3-2})$$

qu'il est difficile de comparer à (III.7.3-1) en raison de la dissymétrie introduite par la présence d'une onde sonde unique. Il est alors commode d'utiliser le fait que les modifications du milieu apportées dans la géométrie d'expérience à une onde sonde (Fig. III.7.3-1(a)) correspondent en très bonne approximation à celles auxquelles conduiraient *deux* ondes sondes ayant des caractéristiques analogues à celles des ondes pompes, et représentées sur la Fig. III.7.3-1(b) (voir annexe A.III). En effet, dans cette dernière situation, le champ total prend la forme plus suggestive suivante :

$$\bar{E}_{II} = \sqrt{2} E_0 \left[\left(1 + \frac{\varepsilon}{2} e^{-i\delta t} \right) \cos(kz) \bar{e}_{-1} - i \left(1 - \frac{\varepsilon}{2} e^{-i\delta t} \right) \sin(kz) \bar{e}_{+1} \right] e^{-i\omega t} + c.c. \quad (\text{III.7.3-3})$$

qui, par comparaison avec (III.7.2-1), fait alors clairement apparaître l'influence de la sonde comme une modulation temporelle en opposition de phase à la fréquence δ des deux composantes de polarisation circulaire du champ pompe.

En remarquant que dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, la profondeur des puits de potentiel U_+ et U_- est proportionnelle à la somme pondérée (poids 1 et 1/3) des intensités des composantes σ^+ et σ^- du champ électrique total, on voit que l'effet du champ sonde sur le milieu consiste en une modulation temporelle de la profondeur des puits de potentiel U_+ et U_- , ces potentiels oscillant en opposition de phase. Nous avons ainsi représenté sur la Fig. III.7.3-2 l'évolution temporelle du potentiel lumineux en présence du champ sonde, les pointillés repérant les limites de celui-ci en présence des ondes pompes seules. A un instant donné, les puits de potentiel associés aux deux sous-niveaux Zeeman $|g, +\rangle$ et $|g, -\rangle$ ont donc des profondeurs différentes. On peut noter également par comparaison avec la Fig. III.7.2-2 que l'amplitude de modulation de la profondeur des puits de potentiel est sensiblement plus importante dans la configuration de polarisation \perp que dans le cas \parallel .

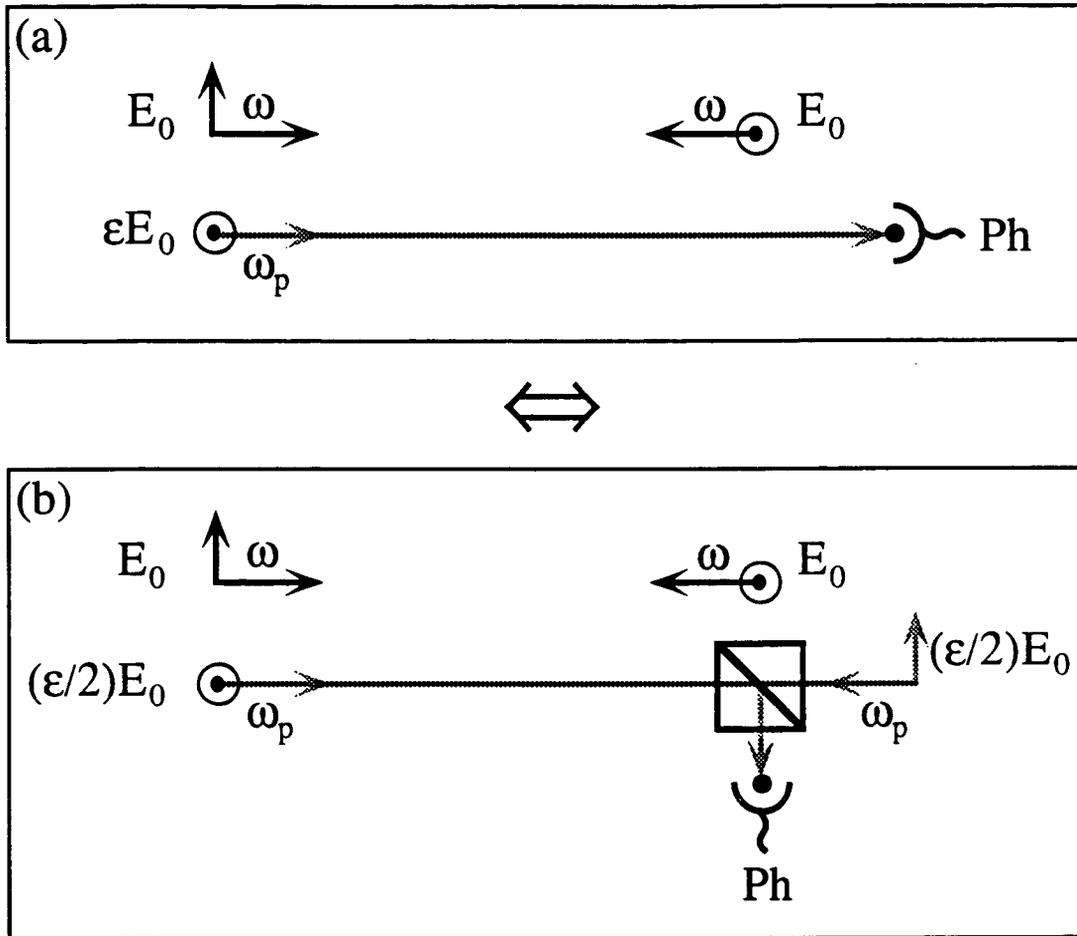


FIG. III.7.3-1 : Symétrisation de l'expérience pompe-sonde dans le cas de la configuration de polarisation \perp . (a) La présence d'une seule onde sonde d'amplitude ϵE_0 et ayant une polarisation linéaire orthogonale à celle de l'onde pompe se propageant dans le même sens (cas expérimental réel), brise la symétrie de la mélasse (invariance par inversion spatiale selon Oz associée à la rotation d'angle $\pi/2$ des polarisations des champs). (b) Afin de rétablir cette propriété de symétrie, on envisage une situation expérimentale fictive utilisant deux ondes sondes d'amplitudes moitiés $(\epsilon/2)E_0$, de polarisations linéaires orthogonales, et parfaitement cohérentes entre elles. On peut alors montrer l'analogie de ces deux géométries d'expérience vis-à-vis des modifications de populations induites par le champ sonde dans le milieu.

Essayons alors de caractériser l'effet de la différence d'intensité des composantes σ^+ et σ^- du champ électrique totale sur les populations des niveaux de vibration des différents puits, en évaluant les taux de transfert entre états liés appartenant à des puits différents par la méthode exposée au §III.5. Nous considérons le taux de transition de l'état $|g, -\rangle \otimes |\tilde{\phi}_n\rangle$ (où $|\tilde{\phi}_n\rangle$ est l'état propre adiabatique tenant compte de la modification de profondeur des potentiels par le champ sonde) vers un état quelconque $|g, +\rangle$. Compte tenu de l'expression (III.7.3-3) du champ total, ce taux est modifié par rapport à (III.5-4) selon :

$$\tilde{\Gamma}_n^{-\rightarrow+} = \gamma_0 [1 - \epsilon \cos(\delta t)] \left(n + \frac{1}{2} \right) \sqrt{\frac{E_R}{U_0 (1 + 2\epsilon \cos(\delta t))}} \quad (\text{III.7.3-4})$$

où l'on voit clairement apparaître la modulation temporelle par le champ sonde du taux de pompage optique de $|g, -\rangle$ vers $|g, +\rangle$ (terme en γ_0), ainsi que de la profondeur du potentiel U_- par la sonde (terme en U_0). On constate également que ces deux effets agissent toujours dans le même sens, vers une augmentation ou une diminution des taux de transfert des puits U_- vers les puits U_+ . On sait en effet que ces taux dépendent de la valeur moyenne de l'intensité de la composante σ^+ du champ sur l'extension spatiale de la fonction d'onde $|\tilde{\phi}_n\rangle$. Or, comme on peut le constater sur la Fig. III.7.3-2, la diminution de l'intensité de la composante σ^+ (diminution de la profondeur des puits U_+) s'accompagne de l'augmentation de la profondeur du potentiel U_- , et donc de la réduction de l'extension spatiale de la fonction d'onde, ce qui diminue d'autant plus l'intensité de la composante σ^+ vue par l'atome au fond des puits U_- .

En ne retenant que les termes d'ordre au plus 1 en ε , on obtient finalement :

$$\tilde{\Gamma}_n^{-\rightarrow+} = [1 - 2\varepsilon \cos(\delta t)] \Gamma_n^{-\rightarrow+} \quad (\text{III.7.3-5})$$

On détermine de même les taux de transition de l'état $|g, +\rangle \otimes |\tilde{\phi}_n\rangle$ vers un état quelconque $|g, -\rangle$:

$$\tilde{\Gamma}_n^{+\rightarrow-} = [1 + 2\varepsilon \cos(\delta t)] \Gamma_n^{-\rightarrow+} \quad (\text{III.7.3-6})$$

La comparaison de (III.7.3-5) et (III.7.3-6) montre alors clairement que le champ sonde induit un transfert net de populations modulé temporellement à la fréquence δ en direction des puits de potentiel les plus profonds. Ainsi, contrairement au cas de la configuration de polarisation \parallel où le signe des modifications de populations dépendait de la valeur de U_0/E_R , on se trouve ici dans une situation où les redistributions de populations s'effectuent toujours dans le sens des puits les moins profonds vers les puits les plus profonds [Rq.III-32].

[Rq.III-32] Nous n'avons toutefois ici caractérisé que les modifications de populations liées aux transferts d'un puits de potentiel à un autre. Ces processus sont pondérés par les populations stationnaires des niveaux. Il faudrait en principe également considérer l'influence du champ sonde sur les redistributions de populations entre les différents niveaux de vibration d'un même puits. On peut en fait légitimement penser que ces processus, qui tendent à égaliser les populations des différents niveaux et sont donc pondérés par les différences de populations stationnaires, contribuent peu au déséquilibre de populations entre les puits U_- et U_+ .

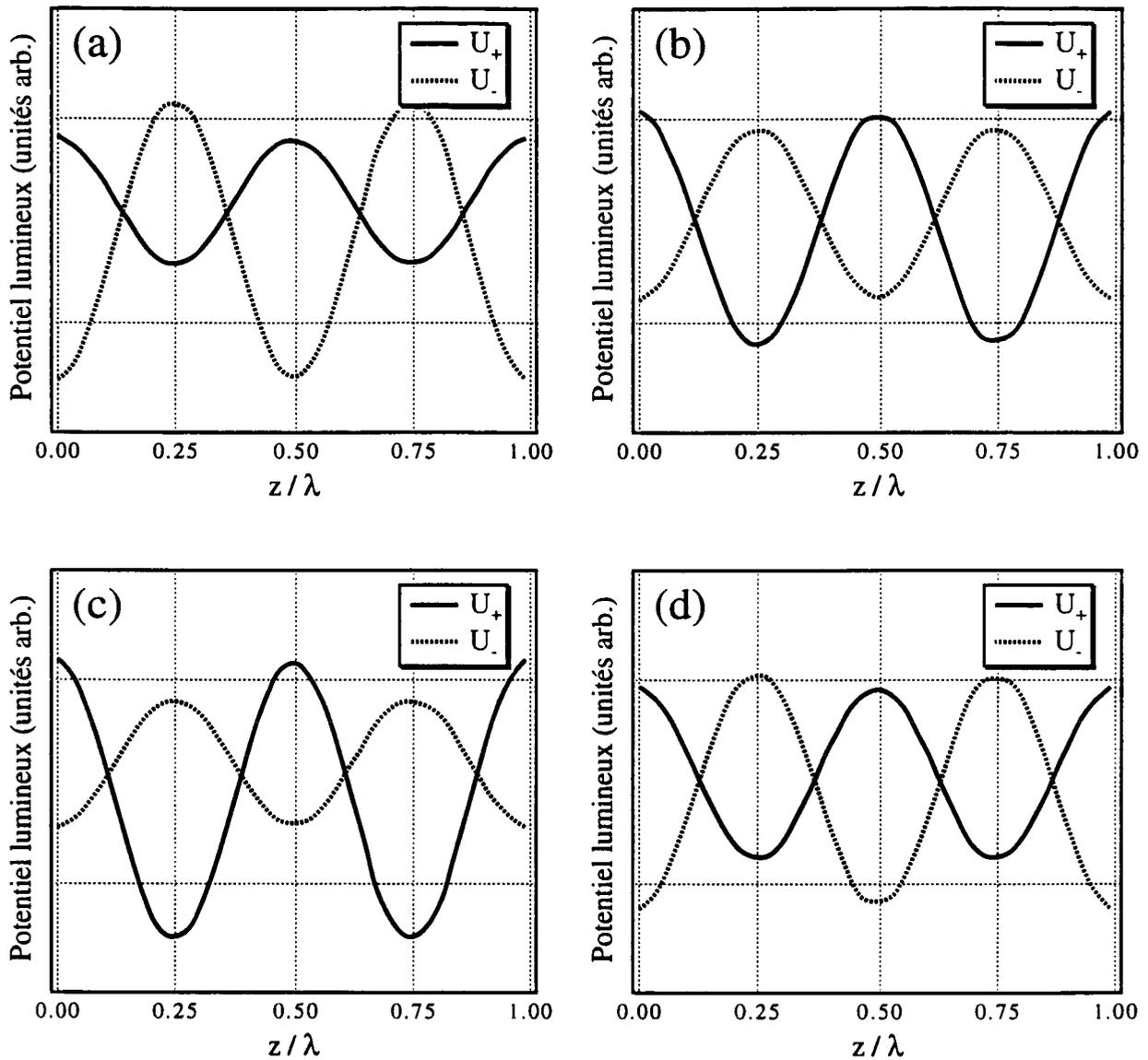


FIG. III.7.3-2 : Évolution temporelle du potentiel lumineux en présence du champ sonde, dans la configuration de polarisation \perp . (a) $\delta t = \pi/8$. (b) $\delta t = 5\pi/8$. (c) $\delta t = 9\pi/8$. (d) $\delta t = 13\pi/8$. La grille indique la position des puits de potentiel en présence des seules ondes pompes. L'effet du champ sonde est de modifier en opposition de phase la profondeur des potentiels U_+ et U_- . On notera que l'amplitude de modulation de la profondeur des puits de potentiel est sensiblement plus importante que dans la configuration de polarisation \parallel (Fig. III.7.2-2).

On pourra donc finalement caractériser le régime imposé par le champ sonde dans l'hypothèse d'une réponse instantanée du milieu, en l'interprétant comme une modification du vecteur $\Pi_-^{(0)}$ contenant l'ensemble des populations stationnaires des niveaux d'énergie associés au sous-niveau Zeeman $|g, -\rangle$, de la forme :

$$\Pi_-^{(0)} \rightarrow \Pi_-^{(0)} + 2\varepsilon \cos(\delta t) \Pi_-^{(1)} \quad (\text{III.7.3-7})$$

où les composantes du vecteur $\Pi_-^{(1)}$ sont positives (éventuellement à quelques exceptions près) et correspondent au transfert de populations vers le potentiel U_+ (à l'instant $t = 0$). Les modifications de populations des niveaux d'énergie associés au sous-niveau Zeeman $|g, +\rangle$ sont alors décrites par le vecteur $-\Pi_-^{(1)}$.

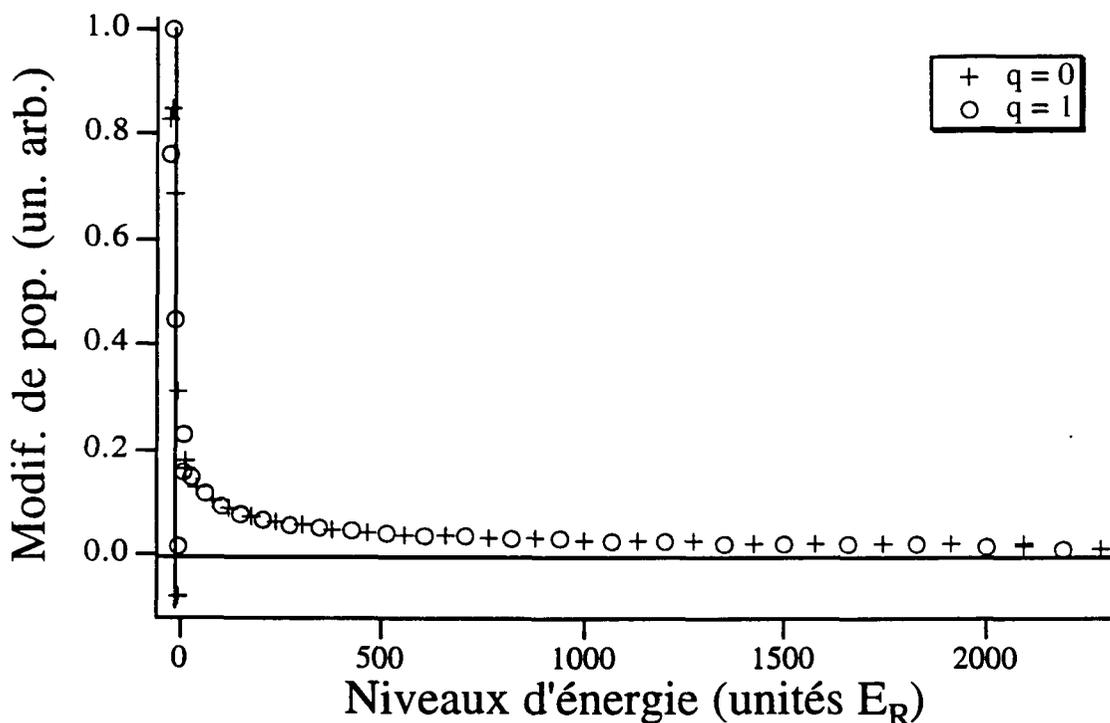


FIG. III.7.3-3 : Structure du régime imposé dans le milieu par l'onde sonde dans le cas d'un potentiel lumineux de profondeur $U_0 = 20 E_R$. Comme attendu, les modifications de populations des 50 premiers états de bandes sont presque toutes positives, et traduisent un transfert net de populations entre les potentiels U_- et U_+ . Les états du continuum sont très largement affectés. Les conditions du calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.7.1-9.

Afin d'une part de confirmer et d'illustrer cette interprétation des modifications de populations par le champ sonde, et d'autre part de parvenir à estimer un taux effectif γ_{eff} de réponse du milieu à la modulation temporelle de fréquence δ , nous allons étudier plus précisément la structure des modifications de populations imposées par la sonde dans les deux cas limites considérés au §III.7.1.c pour l'étude des modes dynamiques de la mélasse. Nous considérons tout d'abord le cas $U_0/E_R = 20$ (potentiel lumineux très peu profond), et nous représentons sur la Fig. III.7.3-3 les modifications de populations $\Pi_-^{(1)}$ imposées par l'onde sonde dans un milieu de temps de réponse infiniment court, telles qu'elles sont issues d'un calcul numérique complet incluant les 50 premiers niveaux de bande. Comme attendu, nous constatons que les éléments de $\Pi_-^{(1)}$ sont presque tous positifs, traduisant bien un transfert net de populations entre les différents niveaux de bandes des puits de potentiel U_- et U_+ . On voit également que les modifications de

populations des états quasi-libres sont importantes, ce qui tend à montrer que les modes de type “pompage optique” seront fortement excités par l’onde sonde (Fig. III.7.1-9). Comme nous l’avons vu au §III.7.1.c, ces modes sont associés à des taux de relaxation proches du taux de pompage optique γ_0 . Nous choisirons donc $\gamma_{\text{eff}} \approx \gamma_0$.

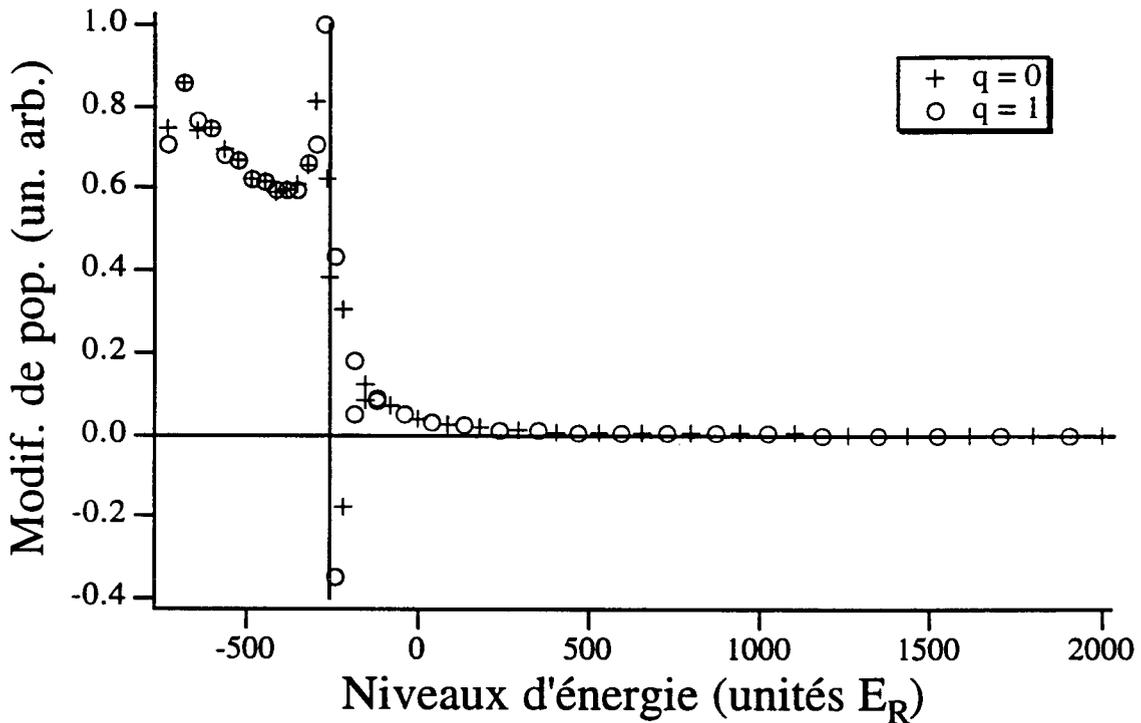


FIG. III.7.3-4 : Structure du régime imposé dans le milieu par l’onde sonde dans le cas d’un potentiel lumineux de profondeur $U_0 = 500 E_R$. Comme attendu, les modifications de populations des 50 premiers états de bandes sont presque toutes positives, et traduisent un transfert net de populations entre les potentiels U_- et U_+ . Les conditions du calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.7.1-10.

Nous considérons à présent le cas des puits de potentiel très profonds. Nous avons représenté sur la Fig. III.7.3-4 la structure du régime imposé par le champ sonde dans le cas $U_0/E_R = 500$, correspondant aux modes dynamiques de la Fig. III.7.1-10. On constate à nouveau que les composantes du vecteur $\Pi_-^{(1)}$ sont presque toutes positives, et traduisent donc à nouveau un transfert net de populations entre les différents niveaux d’énergie des potentiels U_- et U_+ . La comparaison des Figs III.7.1-10 et III.7.3-4 montre cette fois que deux types de modes dynamiques vont être excités par la sonde. D’une part les modes de type “Lamb-Dicke” ($m = 0$ ou 1) décrivant les modifications de populations des états localisés, de taux de relaxation de l’ordre de celui des populations des premiers niveaux de vibration, et d’autre part les modes de type “pompage optique” ($m = 4$), associés aux modifications des premiers états quasi-libres, de taux de l’ordre de γ_0 . Il est donc nécessaire de garder à l’esprit la dualité de γ_{eff} , que nous conserverons comme seul paramètre pour la simplicité des notations, mais qui recouvre l’existence de deux taux

de relaxation différents impliqués dans la réponse dynamique de la mélasse à l'excitation de l'onde sonde.

Le taux de relaxation effectif γ_{eff} du milieu étant à présent caractérisé, il est possible de prendre en compte l'influence du temps de réponse du milieu à l'excitation du champ sonde qui, comme nous l'avons vu au §III.7.2, conduit à modifier l'expression (III.7.3-7) selon :

$$\Pi_{-}^{(0)} \rightarrow \Pi_{-}^{(0)} + \epsilon \Pi_{-}^{(1)} \left[\frac{\gamma_{\text{eff}}}{\gamma_{\text{eff}} - i\delta} e^{-i\delta t} + \text{c.c.} \right] \quad (\text{III.7.3-8})$$

Ainsi, en présence du champ sonde, l'état de la mélasse optique est caractérisé par des populations des états de Bloch $|n, q, \mu\rangle$ différant de leurs valeurs stationnaires $\pi_{n, q, \mu}^{(0)}$ par un terme modulé à la fréquence δ :

$$\pi_{n, q, \mu}^{(0)} \rightarrow \pi_{n, q, \mu}^{(0)} + \epsilon \left(\pi_{n, q, \mu}^{(1)} e^{-i\delta t} + \text{c.c.} \right) \quad (\text{III.7.3-9})$$

avec :

$$\pi_{n, q, -}^{(1)} = -\pi_{n, q, +}^{(1)} = \frac{\gamma_{\text{eff}}}{\gamma_{\text{eff}} - i\delta} \Pi_{n, q, -}^{(1)} \quad (\text{III.7.3-10})$$

où $\Pi_{n, q, -}^{(1)}$ désigne la composante (généralement positive) du vecteur $\Pi_{-}^{(1)}$ décrivant la modification de population de l'état de Bloch $|n, q, -\rangle$.

b. Mécanisme de diffraction des ondes pompes

Ayant identifié la façon dont le champ sonde module temporellement les populations des niveaux de bandes, nous allons à présent étudier le mécanisme par lequel ces variations de populations conduisent au transfert de puissance vers l'onde sonde. La densité de puissance transférée s'exprime en portant (III.7.3-9) dans l'Eq. (R.5-6) :

$$\mathcal{P} = N \hbar \omega_s \Delta \sum_{n, q, \mu} \text{Im} \left[\pi_{n, q, \mu}^{(1)} \langle n, q, \mu | \wp_{\perp} | n, q, \mu \rangle \right] \quad (\text{III.7.3-11})$$

où nous avons négligé la largeur naturelle du niveau excité devant le désaccord à résonance des lasers. En utilisant l'expression (III.7.1-5) de l'opérateur \wp_{\perp} , on peut réexprimer (III.7.3-11) sous la forme suggestive suivante :

$$\mathcal{P} = \frac{2}{3} N \hbar \omega_s \Delta \sum_{n, q, \mu} \text{Im} \left[\pi_{n, q, \mu}^{(1)} \left(\langle n, q, \mu | I e^{-2ikz} | n, q, \mu \rangle - \langle n, q, \mu | J_z / \hbar | n, q, \mu \rangle \right) \right] \quad (\text{III.7.3-12})$$

où l'on distingue deux contributions à la densité de puissance transférée du milieu vers la sonde, ayant une signification physique claire.

Le premier terme de (III.7.3-12), faisant intervenir l'opérateur I, décrit le processus de diffraction vers l'arrière de l'onde pompe se propageant en sens opposé à la sonde (terme dépendant de z), sur le réseau de densité modulé temporellement par la sonde. Il présente de nombreuses analogies avec le phénomène responsable de la structure Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel (§III.7.2.b). L'origine du réseau de densité est lié aux transferts de populations entre les différents niveaux de bandes des puits U_- et U_+ induits par la sonde, qui modifie la densité totale du milieu $\rho_{\text{tot}}^{(0)}$ selon :

$$\rho_{\text{tot}}^{(0)}(z) \rightarrow \rho_{\text{tot}}^{(0)}(z) + \varepsilon \left(\rho_{\text{tot}}^{(1)}(z) e^{-i\delta t} + \text{c. c.} \right) \quad (\text{III.7.3-13})$$

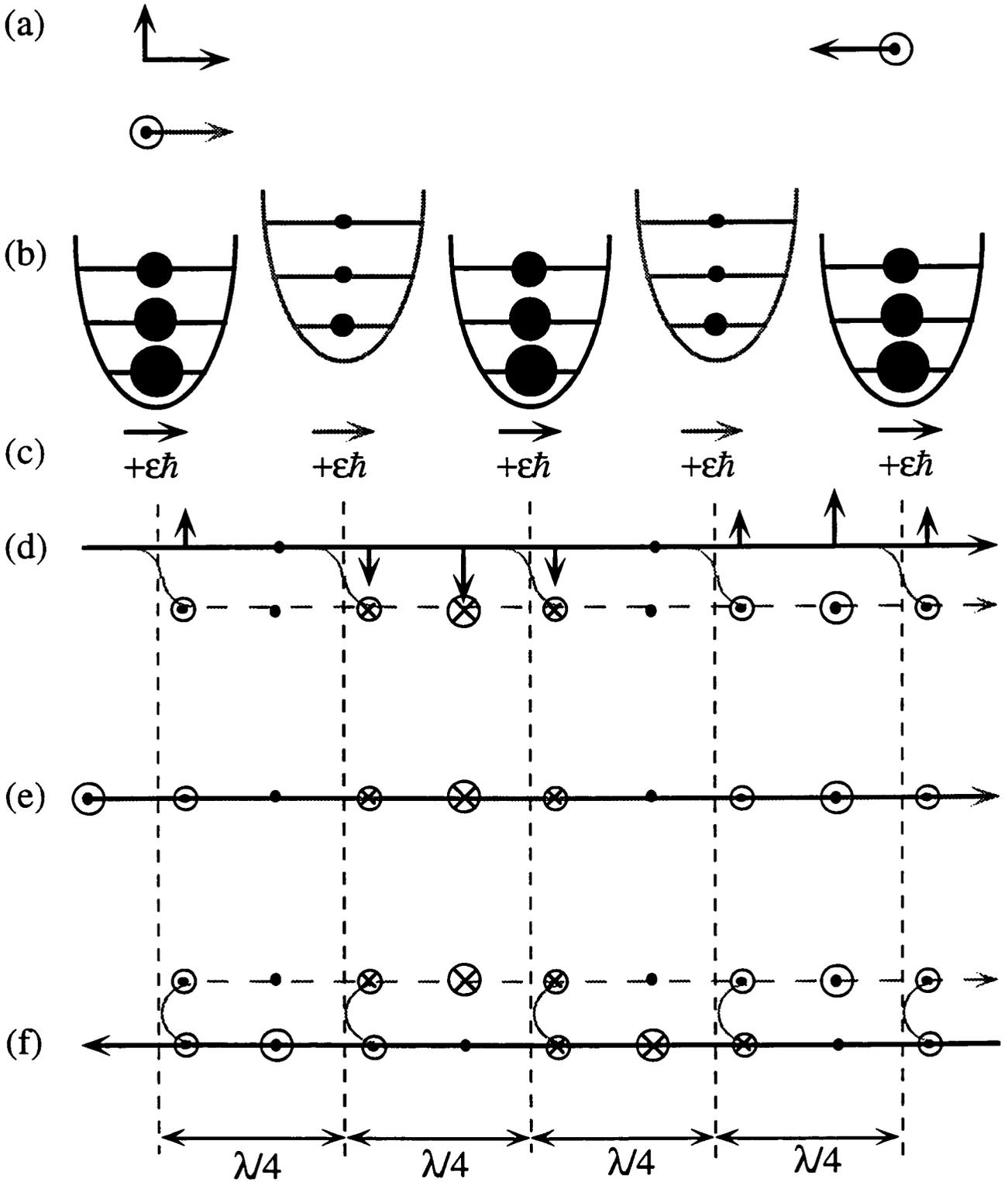
avec :

$$\rho_{\text{tot}}^{(1)}(z) = \rho_-^{(1)}(z) - \rho_-^{(1)}(z + \lambda/4) \quad (\text{III.7.3-14})$$

et :

$$\rho_-^{(1)}(z) = \sum_{n,q} \pi_{n,q}^{(1)} \left| \langle z | n, q, - \rangle \right|^2 \quad (\text{III.7.3-15})$$

L'expression (III.7.3-14) montre que la modulation temporelle de densité induite par l'onde sonde change de signe tous les $\lambda/4$, ce qui provient des transferts de populations entre puits de potentiel voisins, distants de $\lambda/4$. Cette propriété a pour conséquence de déphaser de π les ondes diffractées par deux plans de diffractions successifs distants de $\lambda/4$, déphasage qui est toutefois compensé par la propagation libre des champs, et conduit à une interférence constructive des différentes contributions des plans de diffraction (Fig. III.7.3-5). Ce processus repose sur l'existence d'une forte localisation atomique au fond des puits de potentiel, et fait intervenir sélectivement les niveaux de vibration les plus bas.



Le second terme de (III.7.2-12), impliquant l'opérateur J_z (moment cinétique selon Oz), décrit l'interaction de l'onde pompe se copropageant avec la sonde (terme indépendant de z) avec la partie modulée de l'orientation totale du milieu. L'existence d'une orientation totale non nulle est à nouveau liée aux transferts de populations entre les puits U_- et U_+ induits par la sonde, qui modifient la densité d'orientation du milieu $M_{\text{tot}}^{(0)}$ selon :

$$M_{\text{tot}}^{(0)}(z) \rightarrow M_{\text{tot}}^{(0)}(z) + \varepsilon \left(M_{\text{tot}}^{(1)}(z) e^{-i\delta t} + \text{c.c.} \right) \quad (\text{III.7.3-16})$$

avec :

$$M_{\text{tot}}^{(1)}(z) = -\frac{\hbar}{2} \left(\rho_-^{(1)}(z) + \rho_-^{(1)}(z + \lambda/4) \right) \quad (\text{III.7.3-17})$$

dont la moyenne spatiale est donnée par :

$$\int M_{\text{tot}}^{(1)}(z) dz = -\hbar \sum_{n,q} \pi_{n,q}^{(1)} \quad (\text{III.7.3-18})$$

L'expression (III.7.3-18) montre que la partie modulée de l'orientation totale du milieu est proportionnelle au transfert net de populations entre les potentiels U_- et U_+ . Elle prend donc une valeur non nulle, et induit un processus de rotation Faraday de l'onde pompe se copropageant avec la sonde (Fig. III.7.3-5). Notons que ce processus est insensible à la localisation atomique, et n'introduit donc aucun filtrage dans la contribution des différents niveaux d'énergie. Il est en fait très analogue à l'effet responsable de la résonance Rayleigh stimulée observable dans une vapeur atomique que nous avons discuté au §II.4.2. Nous avons en effet montré qu'en raison du déséquilibre d'intensité des composantes σ^+ et σ^- du champ total induit par l'onde sonde, les processus de pompage optique induisaient une orientation totale modulée non nulle dans le milieu, qui conduisait à un transfert de puissance vers l'onde sonde par rotation Faraday de la polarisation de l'onde pompe. Toutes ces caractéristiques se retrouvent ici, mais on ne saurait pousser l'analogie trop loin, car les propriétés dynamiques des mélasses lin⊥lin diffèrent assez notablement de celles des vapeurs atomiques en raison du phénomène de localisation atomique.

FIG. III.7.3-5 : Mécanisme de diffraction des ondes pompes. Dans la configuration de polarisation \perp (a), le champ sonde induit des modifications de populations opposées dans les puits de potentiel U_- et U_+ (b), se traduisant par une modulation temporelle à la fréquence δ de la densité atomique et de la densité d'orientation du milieu. La partie modulée de la densité d'orientation, schématisée par les flèches au bas des puits de potentiel (c) est d'ordre $\varepsilon\hbar$ et de valeur moyenne non nulle. (d-e) Elle est responsable du processus de rotation Faraday de la polarisation de l'onde pompe se copropageant avec la sonde. (f) La modulation de densité atomique change de signe tous les $\lambda/4$, déphasant le champ diffracté de π à chaque plan de diffraction (matérialisé par un trait pointillé vertical). Ce déphasage est compensé par la propagation libre des champs entre les différents plans de diffraction distants de $\lambda/4$.

Compte tenu des différentes caractéristiques des deux processus de diffraction des ondes pompes que nous venons de discuter, il est possible de réexprimer plus simplement la densité de puissance \mathcal{P} transférée des atomes vers l'onde sonde sous la forme :

$$\mathcal{P} \approx N \omega U_0 \left(\frac{-\delta \gamma_{\text{eff}}}{\delta^2 + \gamma_{\text{eff}}^2} \right) \left\{ 2 \sum_{n,q} \Pi_{n,q,-}^{(1)} \langle n,q,- | I e^{-2ikz} | n,q,- \rangle + \sum_{n,q} \Pi_{n,q,-}^{(1)} \right\} \quad (\text{III.7.3-19})$$

où la première somme correspond au processus de diffraction de Bragg de l'onde pompe se propageant dans la direction opposée à la sonde sur la modulation de densité du milieu, et où la seconde somme est associée à l'effet de rotation Faraday de l'onde pompe se propageant dans la même direction que la sonde par la modulation de l'orientation totale. En utilisant le fait que seuls les niveaux d'énergie localisés contribuent à la première somme, nous pouvons finalement exprimer (III.7.3-19) selon :

$$\mathcal{P} \approx N \omega U_0 \left(\frac{-\delta \gamma_{\text{eff}}}{\delta^2 + \gamma_{\text{eff}}^2} \right) \left\{ 3 \sum_{\substack{\text{états localisés} \\ (n,q)}} \Pi_{n,q,-}^{(1)} + \sum_{\substack{\text{états délocalisés} \\ (n,q)}} \Pi_{n,q,-}^{(1)} \right\} \quad (\text{III.7.3-20})$$

qui fait apparaître une pondération légèrement majoritaire des niveaux localisés, tout en préservant une contribution importante des états d'énergie non localisés. Cette dernière caractéristique est très importante pour comprendre la différence de forme des résonances Rayleigh dans les configurations \parallel et \perp , puisque les niveaux d'énergie très excités, impliqués dans les modes dynamiques de taux de relaxation élevés (proches de γ_0), contribuent ici à part entière à la résonance Rayleigh, et peuvent se manifester sur les spectres par une structure Rayleigh stimulée de largeur γ_0 . Le poids des états localisés dans la densité de puissance transférée vers l'onde sonde laisse également entrevoir l'existence d'un pic central fin dans cette structure à la limite des puits de potentiel profonds où nous avons vu (§III.7.3.a) que des modes dynamiques "Lamb-Dicke" de taux très inférieurs à γ_0 pouvaient être excités par l'onde sonde. Notons enfin que d'après (III.7.3-19), la contribution des états localisés à la densité de puissance (III.7.3-20) provient pour un tiers de l'effet de la modulation d'orientation du milieu, et pour deux tiers de celle de la densité atomique.

c. Allure du spectre de transmission

Nous présentons ici les spectres Rayleigh théoriques calculés pour les deux valeurs de U_0/E_R retenues au §III.7.3.a. Nous en interprétons les caractéristiques à l'aide du modèle simple développé précédemment, et nous discutons l'importance relative des deux processus de diffraction des ondes pompes sur le gain de l'onde sonde.

Nous débutons par le cas des puits de potentiel très peu profonds ($U_0/E_R = 20$). Nous avons représenté sur la Fig. III.7.3-6 la dépendance du gain Rayleigh de la sonde en fonction du paramètre sans dimension δ/γ_0 , en distinguant les contributions liées à l'orientation et au réseau de densité. Nous constatons alors les propriétés suivantes :

- *La structure Rayleigh est de forme dispersive, de demi-largeur γ_0 .* Cette caractéristique est en bon accord avec notre estimation du §III.7.3.a des taux de relaxation des modes dynamiques excités par l'onde sonde à la limite des puits de potentiel peu profonds, où le temps typique d'évolution du système est de l'ordre du temps de pompage optique.
- *La contribution de la densité atomique est sensiblement plus faible que celle de l'orientation.* Ceci prouve que la contribution majoritaire au gain de l'onde sonde provient des niveaux d'énergie délocalisés. En effet, comme nous l'avons montré précédemment, pour les états localisés, la contribution au gain de la densité est deux fois supérieur à celle de l'orientation.
- *L'amplitude de la résonance dans la configuration de polarisation \perp est très supérieure à celle de la configuration de polarisation \parallel .* D'après les Eqs. (III.7.2-14) et (III.7.3-20), ceci montre que la somme des modifications de populations des niveaux localisés dans la configuration de polarisation \parallel (proportionnelle à la dérivée par rapport à U_0/E_R de la population stationnaire totale des états localisés) est beaucoup plus faible que le transfert net de populations entre les puits U_- et U_+ dans la configuration de polarisation \perp .
- *La résonance est dissymétrique par rapport à l'origine.* Ceci est dû essentiellement au choix d'un désaccord à résonance fini ($\Delta = -10 \Gamma$).

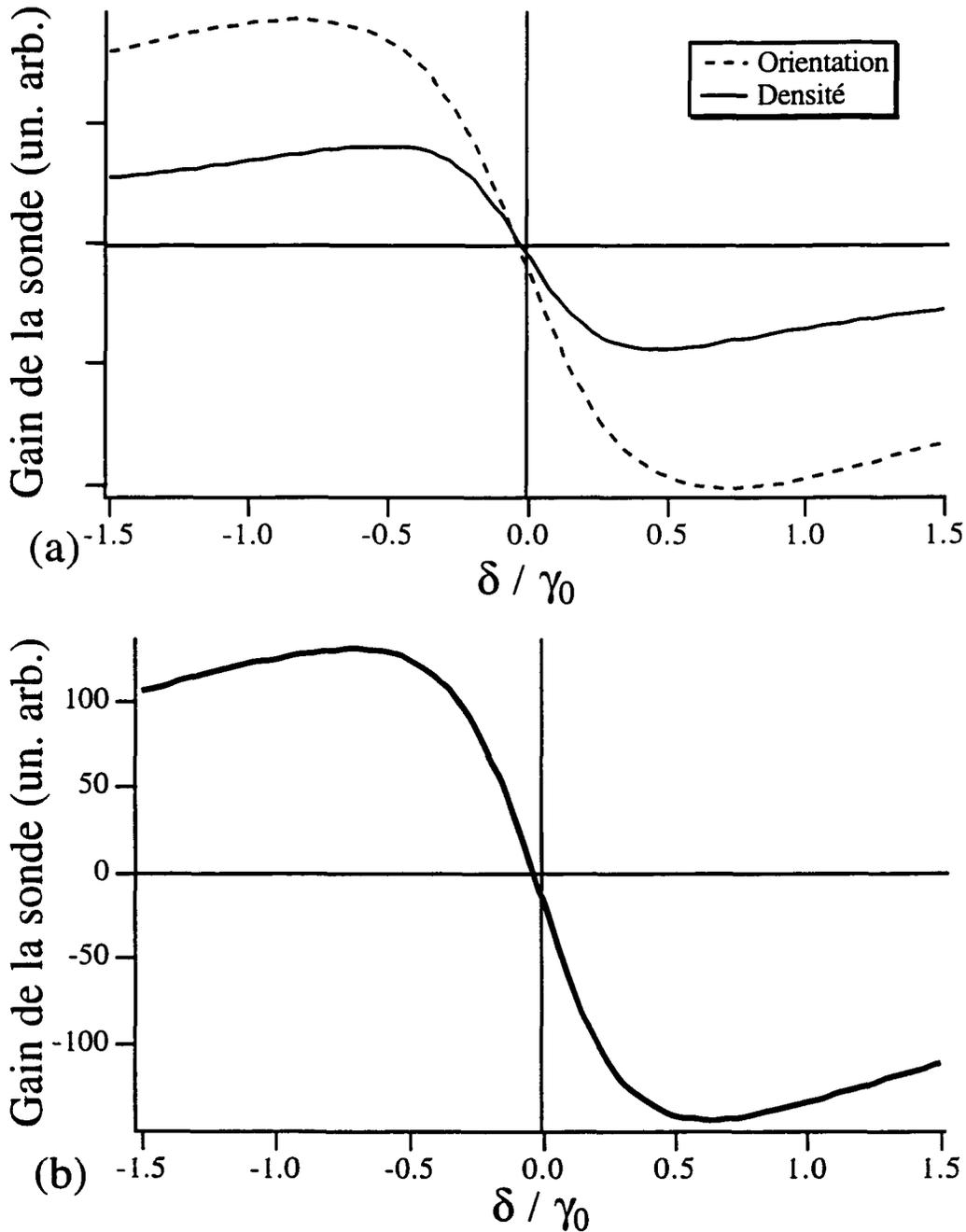


FIG. III.7.3-6 : Gain Rayleigh de l'onde sonde dans la limite des puits de potentiel peu profonds ($U_0/E_P = 20$). (a) Contributions relatives des processus de diffraction des deux ondes pompes sur la modulation temporelle de densité et d'orientation induite dans le milieu par l'onde sonde. La contribution de la densité est sensiblement plus faible que celle de l'orientation. (b) La structure Rayleigh totale présente une forme dispersive de largeur de l'ordre du taux de pompage optique γ_0 . Le gain de la sonde est exprimé dans les mêmes unités que sur la Fig. III.7.2-6. Ce spectre est stable par changement du nombre de bandes considéré dans le calcul (50 ici).

Nous considérons à présent le cas des puits de potentiel très profonds ($U_0/E_R = 500$). Nous avons représenté sur la Fig. III.7.3-7 la dépendance du gain Rayleigh de la sonde en fonction du paramètre sans dimension δ/γ_0 , en distinguant à nouveau les contributions liées à l'orientation et au réseau de densité. Nous constatons alors des différences appréciables par rapport au spectre de la Fig. III.7.3-6 :

- *La structure Rayleigh présente un pic central fin de demi-largeur très inférieure à γ_0 , ainsi que des ailes plus larges.* Comme nous l'avons prédit à la fin du §III.7.3.b, le pic est lié à la contribution des niveaux d'énergie localisés (la contribution de la densité est double de celle de l'orientation au centre de la résonance) dont la dynamique fait intervenir des modes dynamiques de type "Lamb-Dicke" de taux d'évolution réduits par rapport au taux de pompage optique γ_0 (la demi-largeur du pic est de l'ordre du taux de relaxation effectif du niveau de vibration fondamental). On voit également que les ailes larges sont principalement liées à la contribution des états délocalisés (l'effet de densité est plus faible que celui d'orientation au niveau des ailes de la résonance) dont le temps typique d'évolution est de l'ordre du temps de pompage optique. Nous avons là confirmation de la dualité du taux d'évolution effectif γ_{eff} mise en évidence au §III.7.3.a.
- *L'amplitude de la résonance est comparable à celle de la Fig. III.7.3-6.* D'après l'expression des taux (III.7.3-5) et (III.7.3-6), on s'attend en effet à ce que le transfert net de populations entre les puits U_- et U_+ dépende peu de la profondeur du potentiel. La faible différence d'amplitude entre les spectres des Figs III.7.3-6 et III.7.3-7 provient d'ailleurs essentiellement de la contribution plus importante des états d'énergie localisés, plus nombreux et d'extension spatiale plus réduite à la limite des puits de potentiel très profonds.

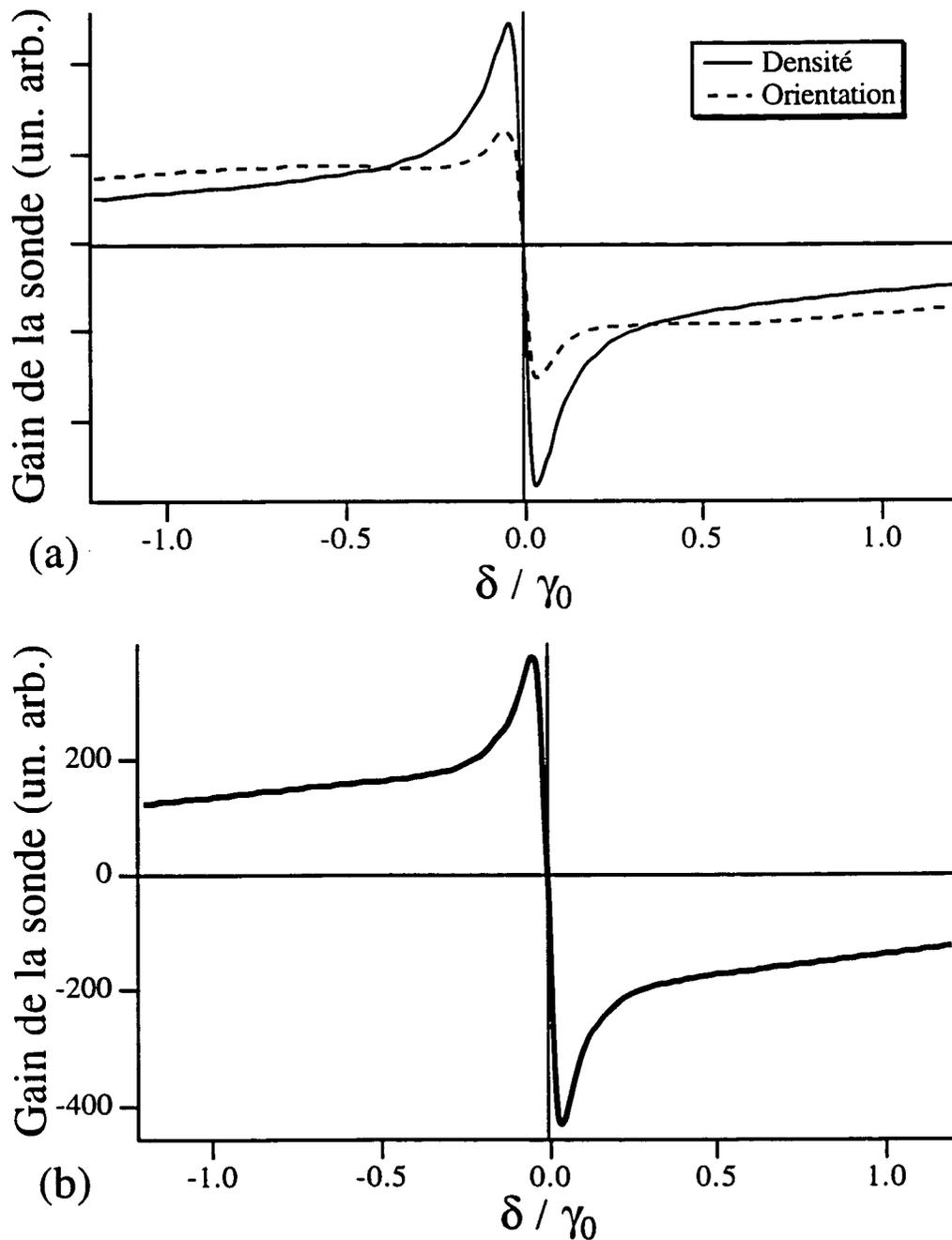


FIG. III.7.3-7 : Gain Rayleigh de l'onde sonde à la limite des puits de potentiel très profonds ($U_0/E_R = 500$). (a) Contributions relatives des processus de diffraction des deux ondes pompes sur la modulation temporelle de densité et d'orientation induite dans le milieu par l'onde sonde. Au centre de la résonance, la contribution de la densité est sensiblement plus importante que celle de l'orientation. (b) La structure Rayleigh totale présente une forme de falaise résultant de la superposition de dispersions de largeur différentes. Le gain de la sonde est exprimé dans les mêmes unités que sur la Fig. III.7.2-6.

Nous concluons en donnant l'allure complète du spectre de transmission de l'onde sonde dans le cas d'un potentiel de profondeur intermédiaire $U_0/E_R=200$, et pour un désaccord à résonance $\Delta = -10 \Gamma$ (Fig. III.7.3-8). On constate que ce spectre est en bon accord qualitatif avec le résultat expérimental de la Fig. III.2-2 [Rq.III-33].

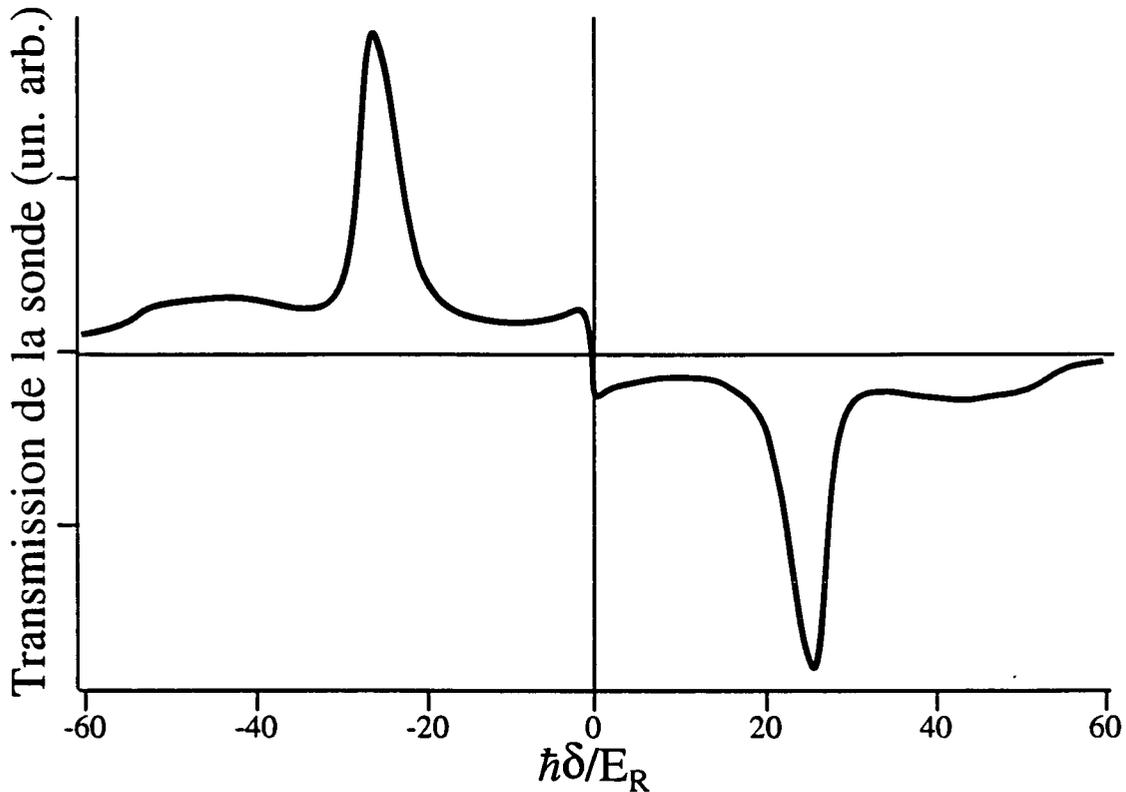


FIG. III.7.3-8 : Spectre de transmission Raman et Rayleigh de l'onde sonde pour $U_0/E_R = 200$ et un désaccord à résonance $\Delta = -10 \Gamma$. On distingue clairement les raies Raman, les premières harmoniques, ainsi que la structure Rayleigh stimulée présentant une forme de falaise caractéristique de la configuration de polarisation \perp . Ce résultat est en bon accord avec le spectre expérimental de la Fig. III.2-2.

[Rq.III-33] La différence quantitative entre les spectres numérique et expérimental est liée d'une part à la transition atomique considérée ($J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ dans le cas numérique, $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ dans le cas expérimental), et d'autre part à l'emploi d'un angle non nul entre pompes et sonde dans les expériences, qui peut conduire à un élargissement Doppler inhomogène des résonances, ainsi qu'à une structure résonnante induite par le recul au centre du spectre.

d. Caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé

Nous sommes à présent en mesure de résumer les caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé des mélasses optiques 1D lin⊥lin dans la configuration de polarisation \perp en répondant aux différents critères de classification énoncés au chapitre II. Comme nous l'avons montré précédemment, l'origine de cet effet est lié à la modulation en opposition de phase par l'onde sonde de la profondeur des potentiels U_- et U_+ , qui engendre un transfert net de populations entre ces puits de potentiel, et par suite une modulation de la densité atomique et de l'orientation totale du milieu. Nous avons également mis en évidence le lien entre l'effet de rotation Faraday de l'onde pompe se propageant dans le même direction que l'onde sonde et le processus analogue ayant lieu dans les vapeurs atomiques d'atomes à plusieurs niveaux. Du fait de cette analogie (même processus de relaxation, mêmes largeur et forme de résonance, même processus de diffraction de l'onde pompe), nous ne considérerons pas que l'effet Rayleigh stimulé des mélasses optiques lin⊥lin observable dans la configuration de polarisation \perp à la limite des puits de potentiel très peu profonds présente un caractère suffisamment original pour qu'il soit distingué de celui des vapeurs atomiques (la seule réelle différence est la contribution de la modulation de densité, mais qui est trop faible pour être distinguée sur les spectres). Par contre, la limite des puits de potentiel profonds où la résonance Rayleigh stimulée présente une forme de falaise, témoignant de l'influence du phénomène de localisation sur les propriétés dynamiques du milieu, mérite une distinction particulière bien que l'on puisse considérer les ailes de cette résonance comme analogues à la structure Rayleigh des vapeurs atomiques. Par référence aux modes dynamiques excités dans cette situation, nous baptiserons le processus correspondant du nom d'effet Rayleigh stimulé lin⊥lin (\perp) "Lamb-Dicke". Ses caractéristiques sont résumées dans le Tableau III.7.3-1.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Mélasse optique lin \perp lin Puits de potentiels profonds	Atomes Transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$	Deux ondes se propageant en sens opposés, de mêmes intensité et de même fréquence Grand désaccord rouge Faible saturation Polarisations linéaires \perp
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
Taux de pompage optique + Taux de relaxation effectifs des populations des états liés	Pompage optique	Origine du mécanisme de relaxation
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Modulation en opposition de phase de la profondeur des puits de potentiel U_+ et U_-	Polarisation linéaire \perp à celle de l'onde pompe se propageant dans la même direction Angle nul entre pompes et sonde	Diffraction de Bragg vers l'arrière de l'onde pompe se propageant en sens opposé Rotation Faraday de l'onde pompe se propageant dans la même direction

Tableau III.7.3-1 : Caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé lin \perp lin (\perp) "Lamb-Dicke" dans le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$

8. Cas des transitions atomiques de moment cinétique entier

L'étude menée précédemment dans le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ a permis de mettre en évidence l'originalité de l'effet Rayleigh stimulé des mélasses optiques 1D lin⊥lin, et de discuter sa contribution aux spectres expérimentaux du §III.4 obtenus pour la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ du césium. Il est pourtant légitime de se demander si une telle transition, comportant neuf sous-niveaux Zeeman dans l'état fondamental, donne réellement lieu aux mêmes phénomènes physiques que ceux discutés jusqu'ici, et si de nouveaux effets peuvent venir modifier l'allure du spectre de transmission de l'onde sonde. C'est le but de ce paragraphe d'esquisser une réponse à ces questions.

Nous considérerons le cas des transitions atomiques $J_g \rightarrow J_e = J_g + 1$ de moment cinétique $J_g > 0$ entier, en nous concentrant plus particulièrement sur la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ utilisée dans les expériences. Nous commencerons par l'étude des populations stationnaires des niveaux de vibration, et nous mettrons en évidence à grand désaccord et pour les transitions de moment cinétique suffisamment élevé, l'existence de variations résonnantes de ces populations en fonction de la profondeur des puits de potentiel (§III.8.1). Nous discuterons ensuite les caractéristiques du spectre Rayleigh de transmission de l'onde sonde dans la configuration de polarisation II, que nous comparerons avec celles du §III.7.2. Nous en déduirons un moyen expérimental de mettre en évidence la dépendance résonnante des populations des niveaux vibrationnels en fonction de la profondeur de potentiel (§III.8.2).

8.1. Dépendance des populations des niveaux vibrationnels en fonction de la profondeur de potentiel

Nous reprenons ici brièvement la discussion du §III.3 sur la quantification des degrés de liberté atomiques externes dans le cas d'une mélasse optique 1D lin⊥lin, en envisageant cette fois le cas d'une transition atomique $J_g \rightarrow J_e = J_g + 1$ de moment cinétique $J_g > 0$ entier. Nous nous plaçons à nouveau dans la situation où la partie dissipative du couplage atome-champ de refroidissement est négligeable devant la partie hamiltonienne, et où la base d'états la mieux adaptée à l'étude des propriétés physiques de la mélasse est celle des états propres du Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ associé aux déplacements lumineux induits par les ondes pompes (R.3.2-7) :

$$H_{\text{eff}}^{(0)} = \frac{P^2}{2M} + V_0 \left(\cos(kZ) d_{-1}^- + i \sin(kZ) d_1^- \right) \left(\cos(kZ) d_{-1}^+ - i \sin(kZ) d_1^+ \right) \quad (\text{III.8.1-1})$$

avec :

$$V_0 = -\hbar\Delta s_0 \quad (\text{III.8.1-2})$$

Le premier terme de (III.8.1-1) correspond à l'énergie cinétique du centre de masse atomique, tandis que le second est associé aux déplacements lumineux de l'état fondamental. Nous avons vu au §III.3 que dans le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, ce dernier terme est diagonal dans l'espace des variables internes, ce qui permet de ramener la diagonalisation de $H_{\text{eff}}^{(0)}$ à celle d'une particule se déplaçant dans un potentiel (lumineux) bien défini. Cette propriété repose sur la particularité propre aux transitions de moment cinétique $J_g < 1$, pour lesquelles les sous-niveaux Zeeman ne sont pas couplés par les composantes de polarisation σ^+ et σ^- du champ pompe. Or dans le cas considéré ici d'une transition atomique de moment cinétique $J_g > 0$ entier où le niveau fondamental comporte plus de deux sous-niveaux Zeeman, tous les niveaux de nombres quantiques magnétiques de même parité sont couplés entre eux par le champ pompe. Le second terme de (III.8.1-1) comporte donc des termes non diagonaux dans l'espace des variables internes, de telle sorte que la notion de potentiel lumineux n'est plus aussi immédiate. Nous allons toutefois montrer que le spectre de $H_{\text{eff}}^{(0)}$ peut être caractérisé en bonne approximation à l'aide d'un modèle de particules se déplaçant dans un potentiel.

Nous utilisons tout d'abord le fait que les sous-niveaux Zeeman couplés entre eux par le champ pompe se répartissent en deux familles distinctes que nous désignons par l'indice η prenant la valeur +1 (resp. -1) pour les niveaux de nombre quantique magnétique pair (resp. impair) (nous emploierons également le terme de famille "paire" ou "impaire"). Le Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ prend donc la forme :

$$H_{\text{eff}}^{(0)} = \frac{P^2}{2M} + V_{\eta=+1}(Z) + V_{\eta=-1}(Z) \quad (\text{III.8.1-3})$$

où V_η est un opérateur agissant sur les variables atomiques internes et externes des éléments de la famille η . Considérons la base diagonalisant l'opérateur $V_\eta(z)$ au point z . Compte tenu de l'existence de termes non diagonaux dans V_η , les éléments $|\psi_M\rangle$ de cette base, d'énergie v_M , sont de la forme :

$$\langle z|\psi_M\rangle = \sum_{\substack{\mu \text{ tel que} \\ (-1)^\mu = \eta}} \varphi_{M,\mu}(z)|g,\mu\rangle \quad (\text{III.8.1-4})$$

où la somme porte sur les sous-niveaux Zeeman de nombre quantique magnétique μ appartenant à la famille η . Nous définirons l'indice M des états $|\psi_M\rangle$ par le fait qu'au point $z = \lambda/4$ où le champ de refroidissement est polarisé purement σ^+ (voir Eq. (III.5-2)), on a :

$$\langle z = \lambda/4 | \psi_M \rangle = |g, \mu = M\rangle \quad (\text{III.8.1-5})$$

on a alors par continuité au point $z=0$ où le champ laser est polarisé σ^- :

$$\langle z = 0 | \psi_M \rangle = |g, \mu = -M\rangle \quad (\text{III.8.1-6})$$

Ceci reflète à nouveau l'existence d'un ordre anti-ferromagnétique à l'échelle de $\lambda/4$ dans la mélasse 1D lin⊥lin [Rq.III-34]. L'opérateur V_η s'exprime alors [Rq.III-35] :

$$V_\eta(Z) = \sum_M v_M(Z) |\psi_M\rangle \langle \psi_M| \quad (\text{III.8.1-7})$$

et permet de transformer l'expression (III.8.1-3) selon :

$$H_{\text{eff}}^{(0)} = \frac{P^2}{2M} + \sum_{M=-J_g}^{J_g} v_M(Z) |\psi_M\rangle \langle \psi_M| \quad (\text{III.8.1-8})$$

On voit alors que le Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ a la même structure que dans le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ (Eq. (III.3-9)). Il existe toutefois une différence importante entre les deux situations puisqu'ici les états $|\psi_M\rangle$ dépendent explicitement de l'espace (Eq. (III.8.1-4)). Il n'est donc possible d'interpréter le spectre de $H_{\text{eff}}^{(0)}$ comme celui d'une particule se déplaçant dans le potentiel v_M qu'au prix d'une hypothèse de suivi adiabatique des états propres $|\psi_M\rangle$ par la fonction d'onde atomique. Cette approximation revient à négliger le couplage motionnel induit par l'opérateur impulsion P entre les états $|\psi_M\rangle$ d'une même famille [Rq.III-36]. Notre but étant ici d'insister sur les phénomènes physiques, nous nous placerons dans la suite de ce paragraphe dans le cadre de cette approximation, et nous renvoyons le lecteur intéressé à l'annexe A.III, où le principe d'une approche plus rigoureuse est exposé.

[Rq.III-34] L'existence d'une telle structure anti-ferromagnétique est en fait très générale dans une mélasse 1D lin⊥lin. Elle est liée à l'invariance du système par la transformation de symétrie \mathcal{T} (voir annexe A.III).

[Rq.III-35] On voit alors que le choix d'indice M évite de préciser la famille d'appartenance de l'état $|\psi_M\rangle$.

[Rq.III-36] On peut montrer que cette approximation est valide pour les états d'énergie les plus bas. Pour un exemple d'une telle démonstration dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$, voir [Cas92].

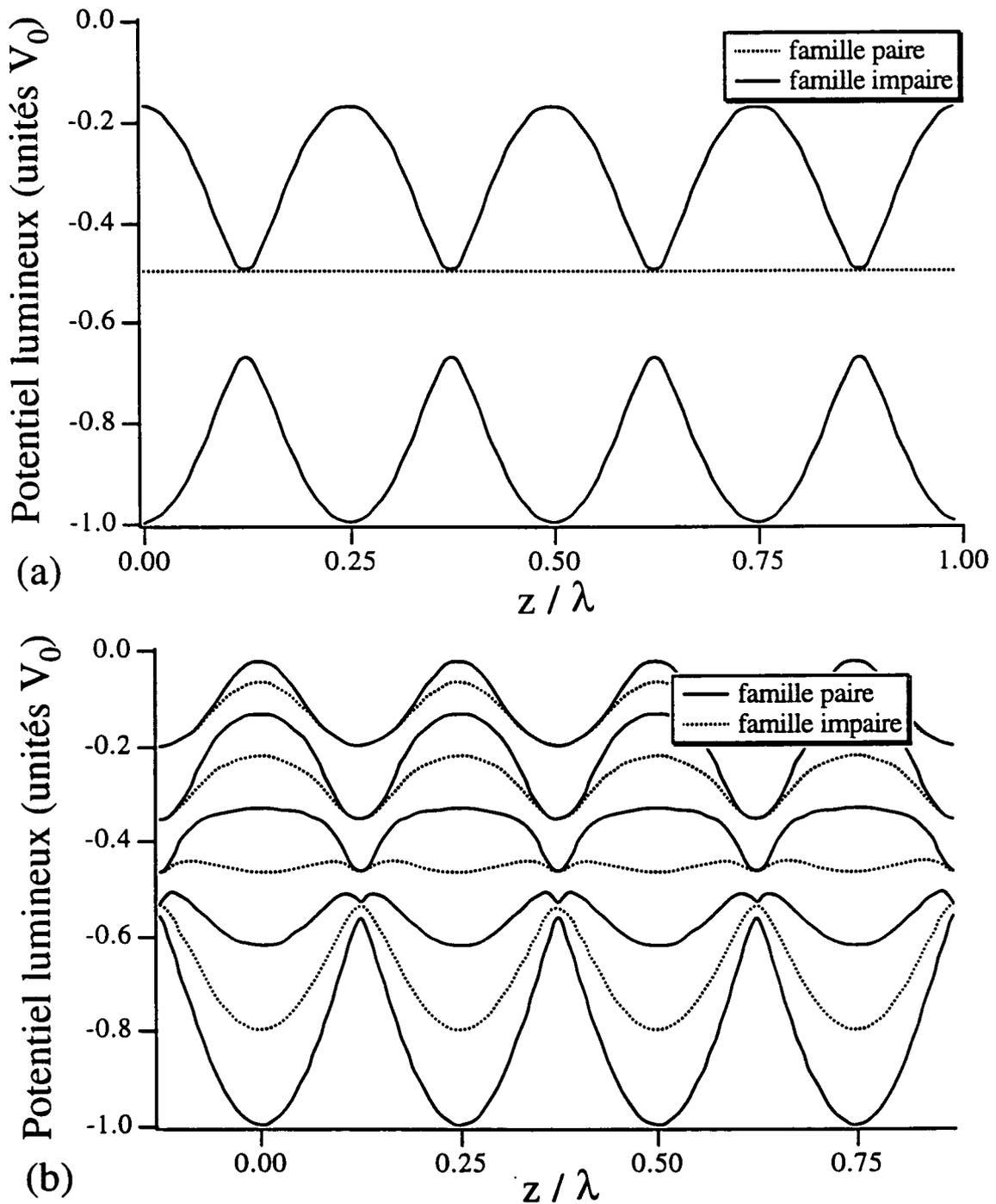


FIG. III.8.1-1 : Dépendance des potentiels v_M en fonction du paramètre sans dimension z/λ (les grandes valeurs de M correspondent aux potentiels de basse énergie). (a) Cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$. Noter l'existence d'un potentiel (v_0) parfaitement plat, associé au sous-niveau Zeeman $|g, 0\rangle$. (b) Cas d'une transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$. Le fond du potentiel $M = 2$ est situé à l'intérieur du puits de potentiel $M = 4$. Les différents potentiels v_M ont des courbures (et donc des fréquences d'oscillation) différentes. Dans les deux cas, le potentiel lumineux a une périodicité $\lambda/4$.

Nous avons représenté sur la Fig. III.8.1-1 la dépendance spatiale des potentiels v_M dans les cas d'une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ (Fig. III.8.1-1(a)) et $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ (Fig. III.8.1-1(b)). Nous constatons immédiatement sur cette figure que les potentiels lumineux v_M ont une périodicité $\lambda/4$. Cette propriété, toujours vérifiée dans le cas d'une transition de moment cinétique J_g entier, est liée à l'invariance du Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ par la transformation de symétrie \mathcal{T} (Eq. (III.7.1-3)). Compte tenu de cette propriété d'invariance par translation de $\lambda/4$ des potentiels lumineux, on s'attend comme au §III.3 à ce que le spectre de $H_{\text{eff}}^{(0)}$ associé au potentiel v_M ait une structure de bande $E_{M,n,q}$ décrite au moyen d'un indice de bande n discret, et d'un indice de Bloch q continu situé dans la première zone de Brillouin $-2k < q \leq 2k$. On pourra donc considérer en première approximation que le Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ est de la forme :

$$H_{\text{eff}}^{(0)} = \sum_{M,n,q} E_{M,n,q} |M,n,q\rangle \langle M,n,q| \quad (\text{III.8.1-9})$$

où l'indice M fait référence à l'état interne $|\psi_M\rangle$ de l'atome.

Comme au §III.3, il est possible de montrer qu'à la limite séculaire, la matrice densité stationnaire du système atomique est purement diagonale dans la base $|M,n,q\rangle$ [Rq.III-37], et que les populations stationnaires de ces niveaux s'obtiennent par résolution d'une équation de taux du type de (III.3-10). Ces populations dépendent alors uniquement du paramètre sans dimension V_0/E_R . Nous allons à présent étudier cette dépendance en distinguant les cas des transitions atomiques $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ et $J_g=1 \rightarrow J_e=2$.

a. Cas d'une transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$

Nous avons représenté sur la Fig. III.8.1-2 la dépendance des populations des cinq premiers états de bande de la famille paire en fonction du paramètre sans dimension V_0/E_R [Rq.III-38]. La comparaison avec le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ (Fig. III.3-2) appelle les remarques suivantes :

- La dépendance globale des populations en fonction de la profondeur de potentiel est la même : augmentation rapide des populations des états liés à faible profondeur de puits (existence d'un seuil pour le mécanisme de refroidissement), puis décroissance lente à la limite des puits profonds.

[Rq.III-37] Il ne faut toutefois pas oublier que notre approximation n'est valide que pour les états d'énergie les plus bas. Il existe une base mieux adaptée à la description complète de l'état de la mélasse, dans laquelle on montre que la matrice densité stationnaire des atomes est effectivement diagonale (voir annexe A.III).

[Rq.III-38] Ces cinq états de bande sont ceux de plus basse énergie, indépendamment du potentiel v_M auquel ils sont associés.

- La population maximale du niveau de vibration fondamental est plus importante dans le cas de la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ ($\approx 50\%$) que pour la transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ ($\approx 35\%$) [Rq.III-39].
- Les populations des niveaux vibrationnels présentent des résonances en fonction de V_0/E_R dans le cas d'une transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$.

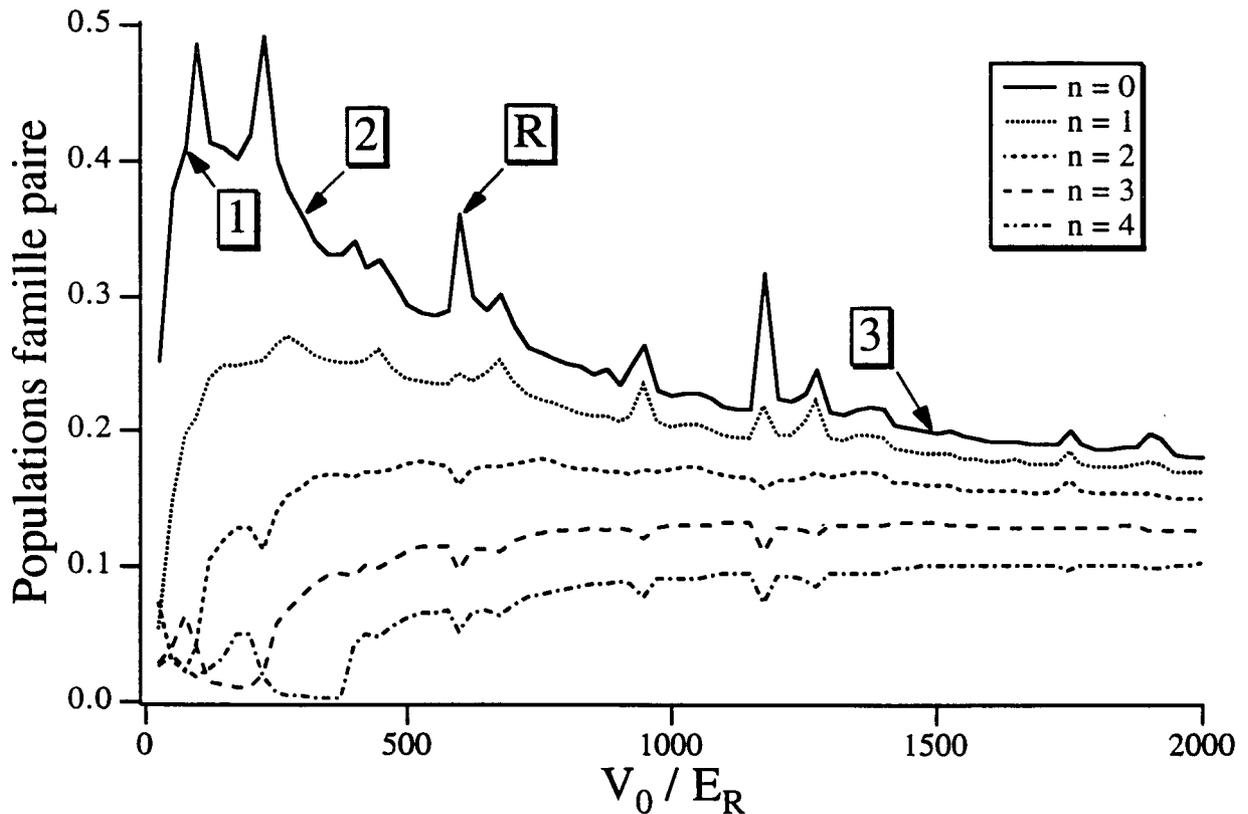


FIG. III.8.1-2 : Dépendance des populations des cinq premiers niveaux de vibration (d'indices n variant de 0 à 4) de la famille paire en fonction du paramètre sans dimension V_0/E_R dans le cas d'une transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$. L'optimum de population du niveau fondamental est de l'ordre de 50%. Les populations des niveaux vibrationnels varient de façon résonnante au voisinage de certaines valeurs de V_0/E_R . Le calcul a été effectué en tenant compte des 38 premiers états de bande, pour deux indices de Bloch, et en calculant les fonctions d'onde atomiques par troncature de l'espace des impulsions de $-88 \hbar k$ à $+88 \hbar k$. La résolution des courbes présentées ici est de $V_0/E_R=25$.

[Rq.III-39] L'optimum de température pour la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ correspond à une impulsion quadratique moyenne de l'ordre de $3 \hbar k$, à comparer à $5.5 \hbar k$ [Cas91a] pour une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$.

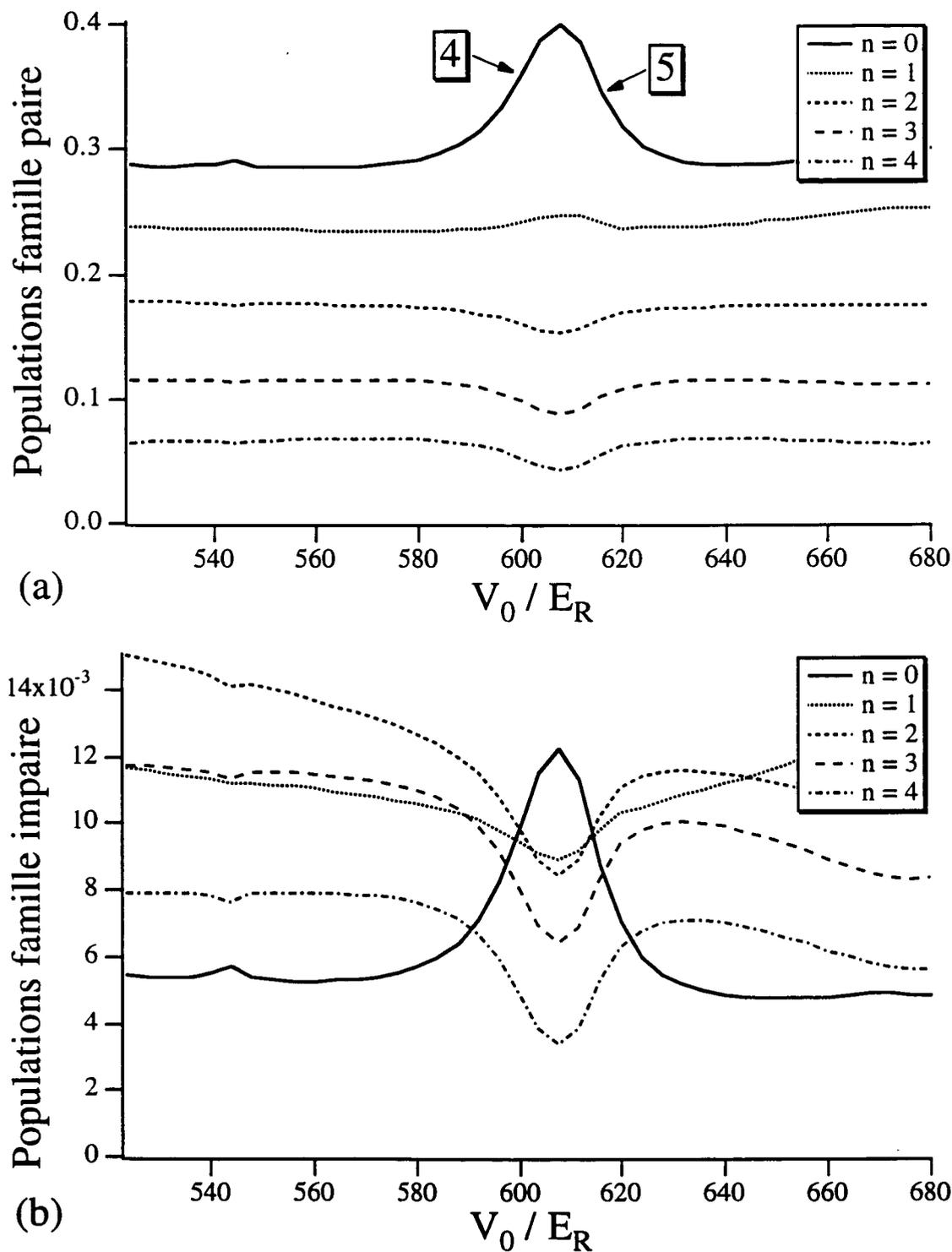


FIG. III.8.1-3 : Dépendance des populations des cinq premiers niveaux de vibration (d'indices n variant de 0 à 4) de la famille paire (a) et impaire (b) en fonction du paramètre sans dimension V_0/E_R dans le cas d'une transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$. On constate que le comportement résonnant du niveau de vibration fondamental du potentiel v_4 ($n=0$, Fig. (a)) s'accompagne d'un phénomène analogue pour le premier niveau de vibration du potentiel v_3 ($n=0$, Fig. (b)).

Nous allons à présent interpréter la dépendance résonnante des populations des états vibrationnels, et montrer son analogie avec le phénomène voisin ayant lieu dans les mélasse optiques linLin bidimensionnelles [Ber93]. Nous nous intéressons par exemple à la résonance située autour de $V_0/E_R = 600$, indiquée sur la Fig. III.8.1-2 par le label R. Nous avons représenté sur la Fig. III.8.1-3 un agrandissement de cette résonance, ainsi que la variation associée des populations des premiers niveaux de vibration de la famille impaire. On constate que la résonance observée sur la population du niveau fondamental $|M = 4, n = 0\rangle$ est corrélée à une résonance de la population du niveau $|M = 3, n = 0\rangle$ (qui reste malgré tout très peu peuplé (population stationnaire $\approx 1\%$)).

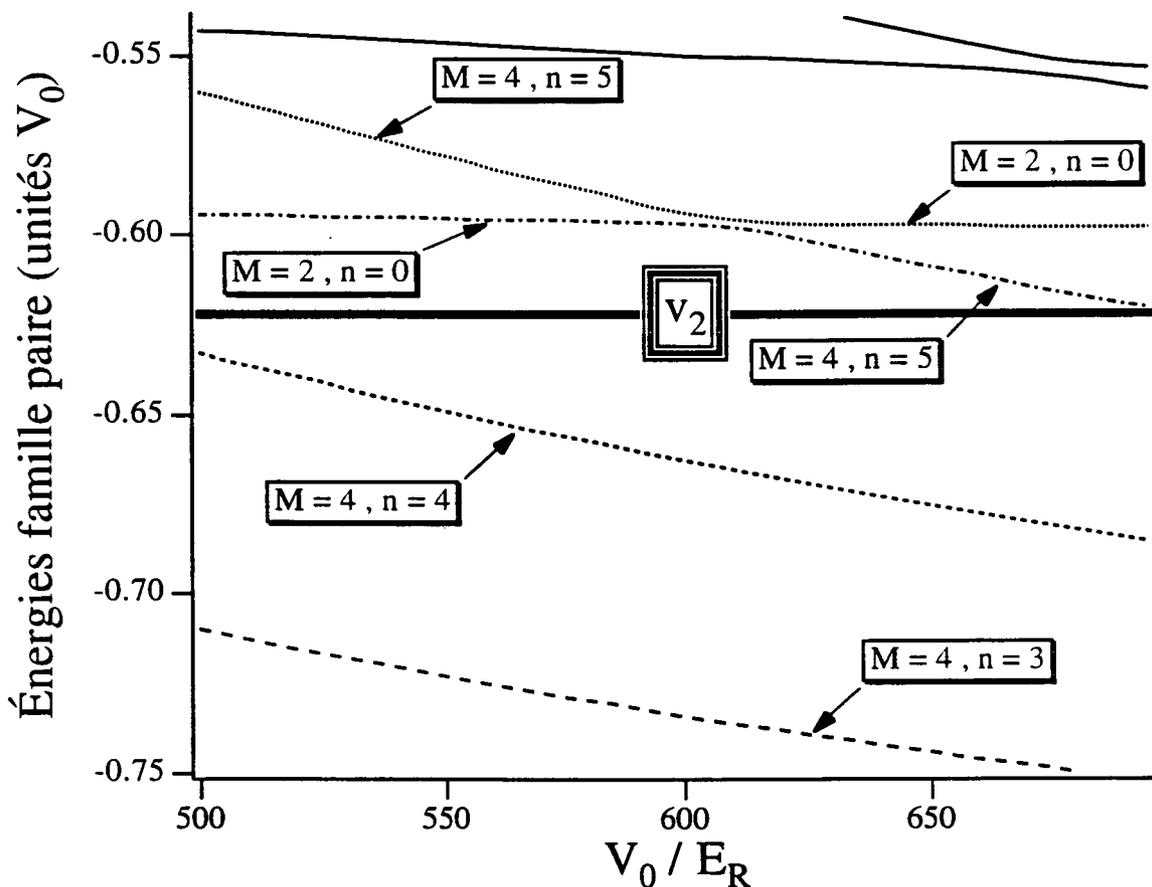


FIG. III.8.1-4 : Anticroisement entre les niveaux de vibration $|M = 4, n = 5\rangle$ et $|M = 2, n = 0\rangle$ au voisinage de $V_0/E_R = 600$. L'anticroisement a lieu pour la valeur du paramètre V_0/E_R correspondant au centre de la résonance de la Fig. III.8.1-3. La distance minimale entre les niveaux d'énergie lors de l'anticroisement est de l'ordre de l'énergie de recul E_R . La ligne horizontale grasse symbolise le fond du potentiel lumineux v_2 .

L'analyse du spectre d'énergie du système au voisinage de $V_0/E_R = 600$ montre de plus que ces résonances se produisent exactement à l'endroit d'un anticroisement entre les niveaux d'énergie $|M = 4, n = 5\rangle$ et $|M = 2, n = 0\rangle$ appartenant à la même famille (paire), mais associés à des potentiels lumineux v_M différents (Fig. III.8.1-4). Le niveau $|M = 2, n = 0\rangle$ correspond à "l'état fondamental" du potentiel lumineux v_2 . Sa fonction d'onde est donnée en bonne approximation par celle de l'état fondamental d'un oscillateur harmonique (densité de probabilité gaussienne). L'état $|M = 4, n = 5\rangle$ est quant à lui un état lié relativement excité du puits de potentiel le plus bas v_4 . Sa fonction d'onde correspond à celle du quatrième état excité d'un oscillateur harmonique, et présente donc des oscillations assez importantes sur l'étendue du puits de potentiel.

Afin d'expliquer la résonance sur la population du niveau fondamental $|M = 4, n = 0\rangle$, nous remarquons tout d'abord qu'un atome dans le niveau $|M = 2, n = 0\rangle$ possède une très forte probabilité d'effectuer une transition par pompage optique vers le niveau $|M = 3, n = 0\rangle$ car le recouvrement de ces deux fonctions d'onde est très important. En effet, du point de vue des variables externes, ces deux niveaux correspondent à un état fondamental gaussien d'oscillateur harmonique, tandis que du point de vue des variables internes, ils sont essentiellement associés aux sous-niveaux Zeeman $|g, +2\rangle$ et $|g, +3\rangle$ aux endroits où la lumière est polarisée σ^+ (resp. $|g, -2\rangle$ et $|g, -3\rangle$ aux endroits où la lumière est polarisée σ^-). De même, un atome dans l'état $|M = 3, n = 0\rangle$ a une très grande probabilité de subir un cycle de pompage optique vers le niveau $|M = 4, n = 0\rangle$. Notons que la transition directe de $|M = 2, n = 0\rangle$ vers $|M = 4, n = 0\rangle$ est très défavorisée en raison de la faible valeur du coefficient de Clebsch-Gordan reliant les sous-niveaux Zeeman $|e, \pm 3\rangle$ et $|g, \pm 4\rangle$ (le carré de ce coefficient est égal à $1/45$). En dehors de l'anticroisement, l'alimentation du niveau $|M = 2, n = 0\rangle$ est faible car sa dépendance spatiale est très différente de la plupart des états excités des potentiels v_M (Fig. III.8.1-5(a)). Par contre, au moment de l'anticroisement, les états $|M = 2, n = 0\rangle$ et $|M = 4, n = 5\rangle$ (fortement alimenté en raison de son bon recouvrement avec les états excités des potentiels) sont mélangés par le couplage motionnel induit par l'opérateur impulsion P figurant dans le Hamiltonien (III.8.1-9). Les deux états résultant $(|M = 4, n = 5\rangle \pm |M = 2, n = 0\rangle)/\sqrt{2}$ ont alors un taux d'alimentation élevé (contribution de $|M = 4, n = 5\rangle$) et un taux de départ important vers $|M = 4, n = 0\rangle$ *via* $|M = 3, n = 0\rangle$ (Fig. III.8.1-5(b)). Ceci se traduit par une augmentation résonnante au niveau de l'anticroisement des populations des niveaux $|M = 3, n = 0\rangle$ et $|M = 4, n = 0\rangle$, conformément au résultat de la Fig. III.8.1-3.

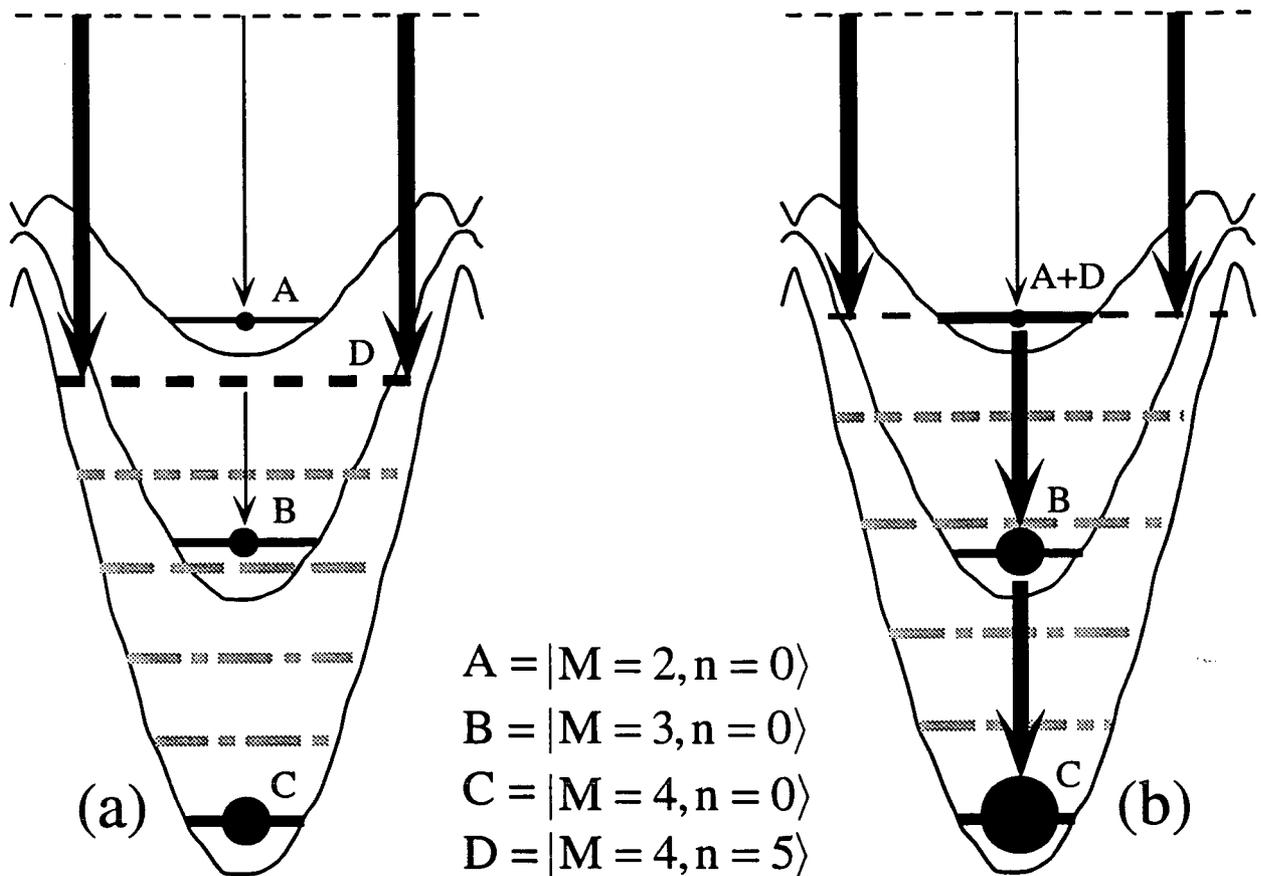


FIG. III.8.1-5 : Origine de la dépendance résonnante des populations des niveaux de vibration en fonction de la profondeur de potentiel. Cas de la résonance centrée en $V_0/E_R \approx 600$ pour une transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$. L'usage de pointillés différents pour les niveaux d'énergie représente le caractère plus ou moins oscillant des fonctions d'onde. L'épaisseur des flèches reflète l'importance des termes d'alimentation des différents niveaux. Seuls les potentiels v_4 , v_3 , et v_2 ont été représentés (voir Fig. III.8.1-1). Les différents états d'énergie impliqués dans la résonance sont symbolisés par une lettre capitale comme indiqué sur la figure. (a) En dehors de l'anticroisement, le niveau A est très peu alimenté car il présente un très faible recouvrement avec les niveaux excités du potentiel (schématisés par un seul niveau en trait pointillé fin en haut de la figure). Le niveau de vibration D du potentiel v_4 , relativement excité et fortement alimenté, ne se désexcite pas vers les niveaux B ou C (faible recouvrement des fonctions d'onde). (b) A l'endroit de l'anticroisement, les niveaux A et D sont mélangés par couplage motionnel. Les états résultant sont à la fois fortement alimentés (contribution de D) et se désexcitent préférentiellement vers les niveaux B, puis C (contribution de A). Il apparaît ainsi dans la mélasse une nouvelle voie de désexcitation vers le niveau fondamental, dont la population augmente de façon résonnante à l'endroit de l'anticroisement.

Finalement, l'origine des résonances de la Fig. III.8.1-2 est liée à l'existence d'anticroisements entre états de vibration de même famille, mais associés à des potentiels lumineux différents, qui par mélange de leur fonctions d'onde ouvrent de nouvelles voies de désexcitation du milieu vers le niveau vibrationnel fondamental [Rq.III-40]. On constate ainsi la grande analogie

[Rq.III-40] Nous avons retenu seulement deux valeurs de l'indice de Bloch pour le calcul des populations stationnaires des niveaux de bande. Un tel choix correspond à des fonctions d'onde ayant des propriétés de

entre ce phénomène et la dépendance résonnante des populations des niveaux de vibration dans une mélasse 2D linLin considérée par [Ber93] dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. La différence vient en fait du processus de couplage responsable de l'anticroisement (couplage motionnel ici, effet tunnel dans le cas 2D), ainsi que de la désexcitation vers le niveau fondamental (qui nécessite ici deux cycles successifs de pompage optique et passage par un niveau de vibration relais d'un autre potentiel, au lieu d'un seul dans le cas 2D). Ceci laisse présager la complexité de la variation des populations des niveaux de vibration en fonction de la profondeur de potentiel dans le cas d'une mélasse 2D linLin et d'une transition de moment cinétique élevé, puisque les deux types de résonance coexisteront.

Précisons pour conclure que la dépendance résonnante des populations ne se produit que dans le domaine de validité de l'approximation séculaire [Ber93]. Cette approximation requiert que la largeur des niveaux de bandes soit très inférieure à leur différence d'énergie [Rq.III-41], qui peut être soit de l'ordre d'une fréquence de vibration des atomes dans les puits de potentiel v_M , soit de l'ordre de E_R/\hbar lors d'un anticroisement [Rq.III-42]. On voit donc qu'elle est beaucoup plus restrictive que dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ (condition (III.3-7)), et qu'elle nécessite le choix d'un désaccord à résonance très important.

b. Cas d'une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$

Nous avons représenté sur la Fig. III.8.1-6 la dépendance des populations des cinq premiers états de bande des famille impaire et paire en fonction du paramètre sans dimension V_0/E_R [Rq.III-43]. La comparaison avec le cas des transitions $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ (Fig. III.3-2) et $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ (Fig. III.8.1-2) appelle les remarques suivantes :

- La dépendance des populations de la famille impaire en fonction de la profondeur de potentiel est très semblable à celle d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$.

symétrie particulières pouvant masquer certains anticroisements, et par conséquent des résonances supplémentaires sur la Fig. III.8.1-2.

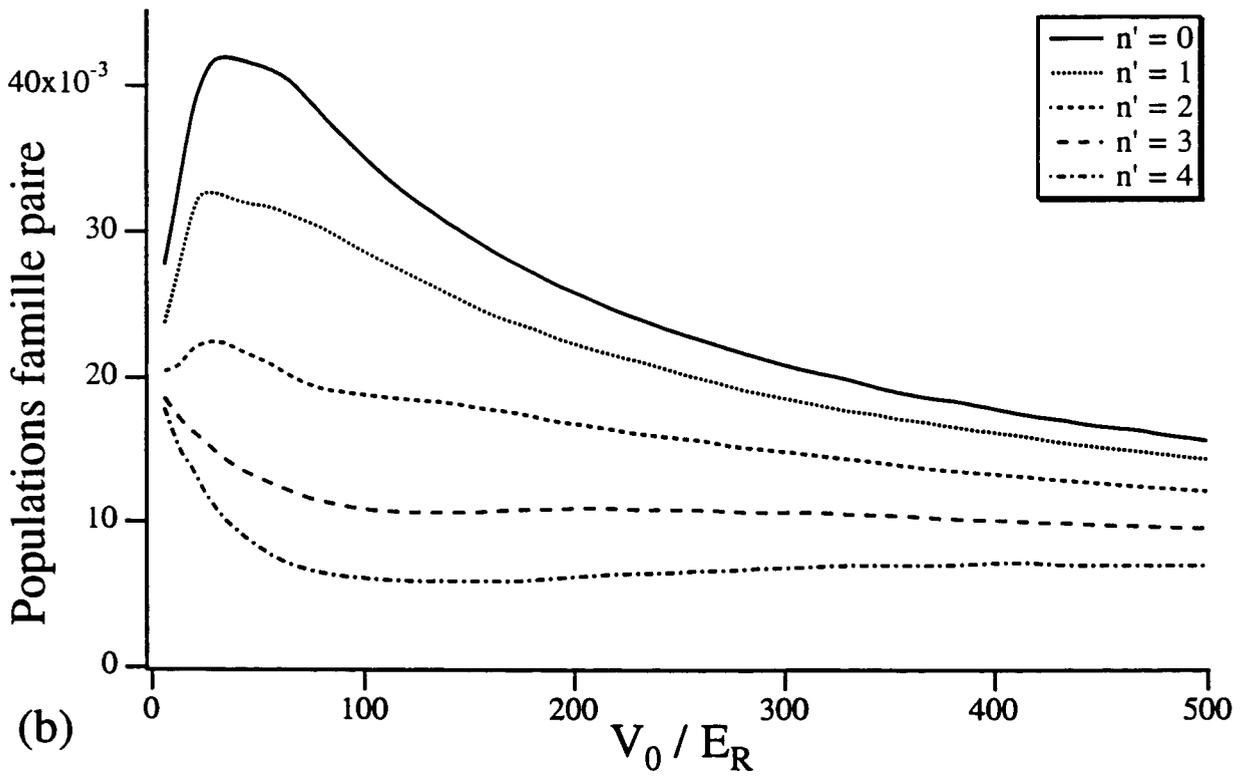
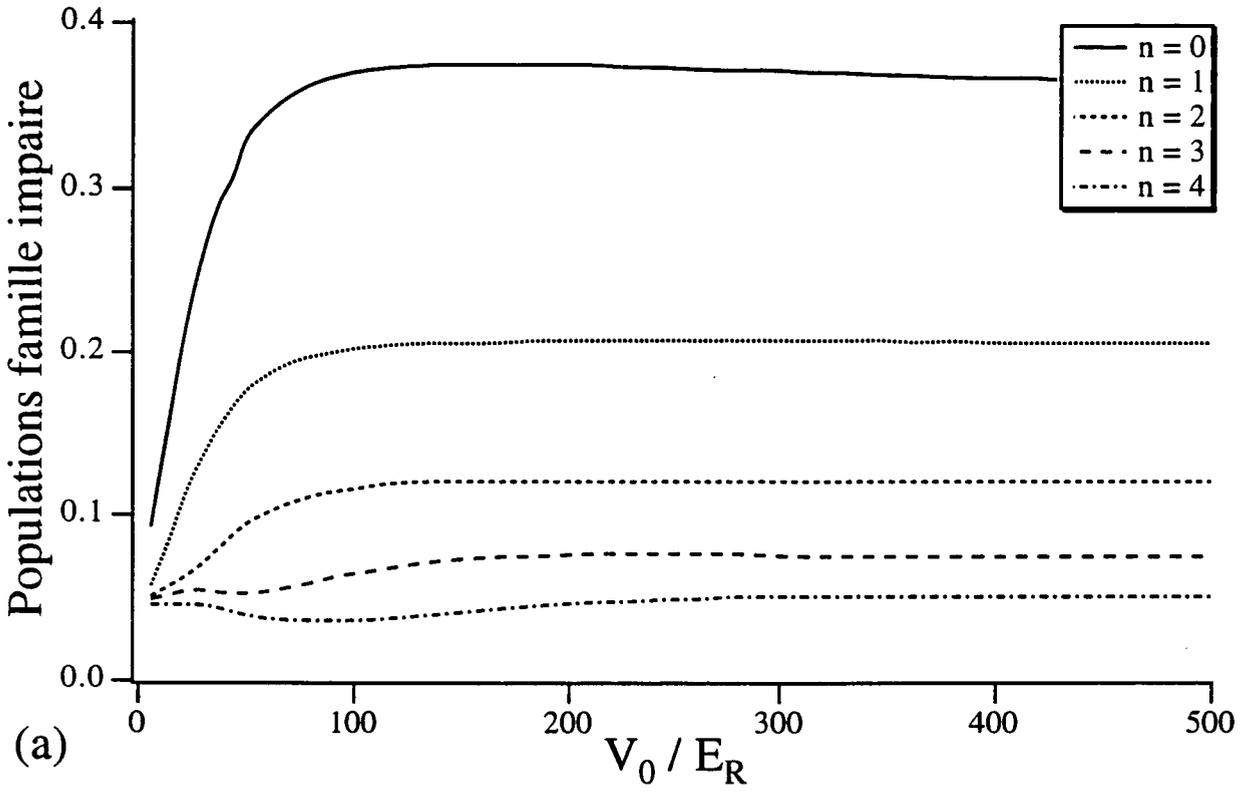
[Rq.III-41] On sait en effet que lorsque la différence de largeur des niveaux est grande devant leur distance à l'anticroisement, l'anticroisement se transforme en fait en croisement, et la variation résonnante des populations en fonction de la profondeur de potentiel disparaît.

[Rq.III-42] Le couplage entre les états $|\psi_M\rangle$ étant lié au terme motionnel $P^2/2M$ du Hamiltonien.

[Rq.III-43] Rappelons que la famille paire, associée au sous-niveau Zeeman $|g,0\rangle$, est une famille d'états totalement libres car le potentiel lumineux v_0 qui lui est associé ne présente aucune modulation spatiale (voir Fig. III.8.1-1).

- La population maximale du niveau de vibration fondamental ($\approx 40\%$) est plus importante que dans le cas de la transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ ($\approx 35\%$), mais moins importante que pour la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ ($\approx 50\%$).
- Les populations des niveaux vibrationnels ne présentent *pas de comportement résonnant* en fonction de V_0/E_R , contrairement au cas d'une transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$.

On peut se demander pourquoi une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ ne présente pas de variation résonnante des populations des niveaux de vibration en fonction de la profondeur de potentiel. Afin de comprendre l'origine de ce phénomène, analysons les différents éléments intervenant dans ces résonances. Nous savons tout d'abord que les résonances se produisent aux endroits d'anticroisements entre niveaux de vibration. Nous avons représenté sur la Fig. III.8.1-7 une partie du spectre de la famille impaire pour des valeurs de V_0/E_R de l'ordre de 100. Or nous constatons la présence de plusieurs anticroisements, notamment un se produisant pour $V_0/E_R \approx 100$ (repéré par la label A sur la Fig. III.8.1-7). Un tel anticroisement entre états d'énergie associés aux potentiels v_1 et v_{-1} (voir Fig III.8.1-1) est très semblable à celui envisagé dans le cas de la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ et conduit à un mélange de fonctions d'onde entre niveaux d'indices $M = 1$ (très excité et délocalisé) et $M = -1$ (état localisé du potentiel v_{-1}). Il y a donc bien *a priori* ouverture d'une nouvelle voie de désexcitation dans la mélasse, mais nous allons maintenant voir pourquoi elle ne conduit pas à une augmentation résonnante de la population du niveau vibrationnel fondamental.



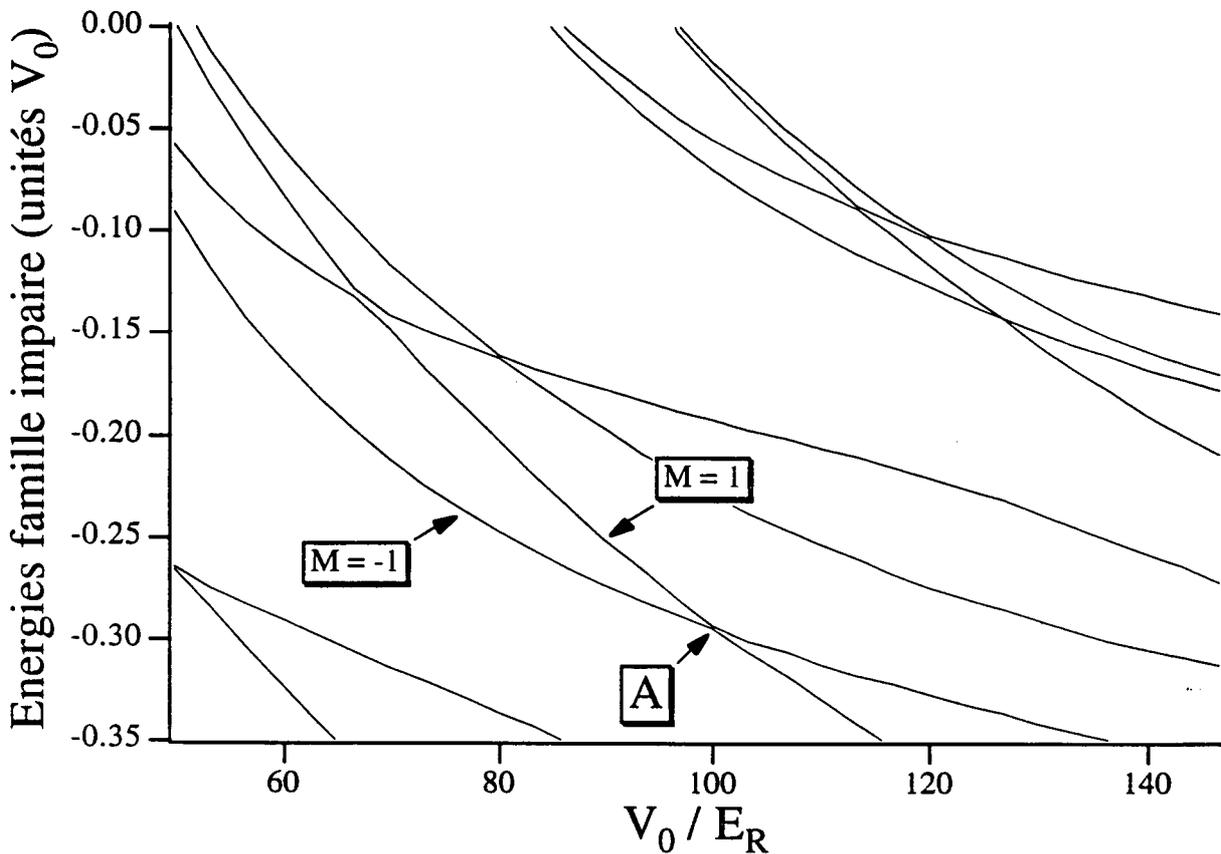
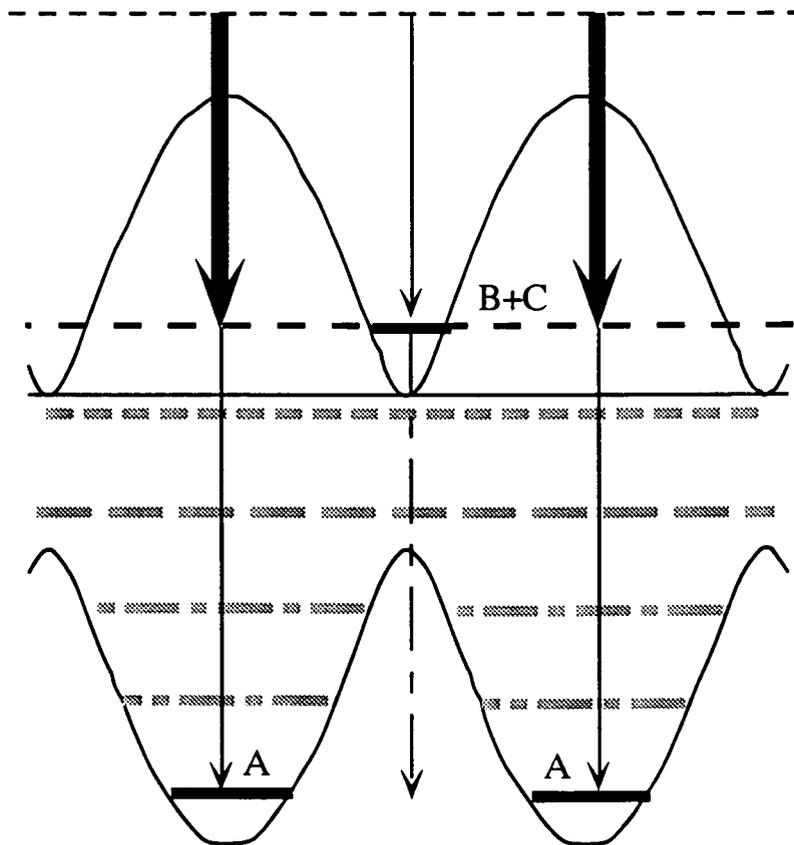


FIG. III.8.1-7 : Anticrossings entre niveaux de vibration de la famille impaire. On note en particulier l'existence d'un anticrossing (label A) entre états d'énergie associés aux potentiels v_1 et v_{-1} (voir Fig. III.8.1-1) au voisinage de $V_0/E_R = 100$. Cet anticrossing ne se manifeste pourtant pas sur la Fig. III.8.1-6 sous la forme d'une résonance de la population du niveau vibrationnel fondamental.

Nous avons représenté schématiquement sur la Fig. III.8.1-8 la position des niveaux d'énergie de la famille impaire à l'endroit d'un anticrossing entre les états $|M = -1, n = 0\rangle$ (indiqué par la lettre B sur la Fig. III.8.1-8) et $|M = 1, n > 0\rangle$ (lettre C). Les niveaux $(|M = 1, n > 0\rangle \pm |M = -1, n = 0\rangle)/\sqrt{2}$ issus du mélange des fonctions d'onde sont fortement alimentés par les états excités du potentiel (contribution de $|M = 1, n > 0\rangle$). Mais on constate clairement sur la Fig. III.8.1-8 que contrairement au cas d'une transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$, il n'en

FIG. III.8.1-6 : Dépendance des populations des cinq premiers niveaux de vibration (d'indices n variant de 0 à 4) des familles impaire (a) et paire (b) en fonction du paramètre sans dimension V_0/E_R dans le cas d'une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$. L'optimum de population du niveau fondamental est de l'ordre de 37%. Les populations de niveaux vibrationnels ne présentent pas de comportement résonnant en fonction de V_0/E_R . Le calcul a été effectué en tenant compte des 38 premiers états de bande, pour deux indices de Bloch, et en calculant les fonctions d'onde atomique par troncature de l'espace des impulsions de $-50 \hbar k$ à $+50 \hbar k$. La résolution des courbes présentées ici est de $V_0/E_R=12.5$.

résulte pas pour autant un surplus d'alimentation de l'état vibrationnel fondamental $|M = 1, n = 0\rangle$ (indiqué par la lettre A sur la Fig. III.8.1-8), car le niveau $|M = -1, n = 0\rangle$ a un recouvrement quasi-nul avec lui en raison de la configuration relative des potentiels v_1 et v_{-1} . Ceci explique l'absence de résonance sur les courbes de populations des niveaux de vibration de la Fig. III.8.1-6. Cela implique également que l'effet de dépendance résonnante des populations des niveaux de vibration en fonction de la profondeur de potentiel ne se rencontre que dans le cas des transitions atomiques de moment cinétique suffisamment élevé (entier ou demi-entier).



$$A = |M = 1, n = 0\rangle$$

$$B = |M = -1, n = 0\rangle$$

$$C = |M = 1, n > 0\rangle$$

FIG. III.8.1-8 : Origine de l'absence de dépendance résonnante des populations des niveaux de vibration en fonction de la profondeur de potentiel dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$. Les notations sont semblables à celles de la Fig. III.8.1-5. A l'endroit d'un anticroisement, les niveaux B et C sont mélangés par couplage motionnel. Les états résultant sont fortement alimentés par les niveaux excités de la mélasse (contribution de C) mais ne peuvent se désexciter vers l'état fondamental A car leur recouvrement avec ce niveau est très faible. Il n'apparaît donc pas véritablement de nouvelle voie de désexcitation vers le niveau fondamental.

8.2. Spectroscopie Rayleigh dans la configuration de polarisation II

Les propriétés des niveaux de vibration et de leurs populations étant caractérisées, nous nous intéressons à présent aux spectres de transmission de l'onde sonde à travers une mélasse optique d'atomes de césium (cas de nos expériences). Notre but est de déterminer si pour une telle transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$, l'interprétation physique des spectres donnée aux paragraphes précédents doit être remise en cause. Le cas des résonances Raman ne posant *a priori* pas de problème, nous nous concentrerons ici sur les spectres Rayleigh de transmission. Plus particulièrement, nous considérerons le cas où l'onde sonde a même polarisation linéaire que l'onde pompe se propageant dans le même sens (configuration de polarisation II) [Rq.III-44].

Nous allons suivre ici la même démarche qu'au §III.7.2 en interprétant tout d'abord l'effet de l'onde sonde sur le milieu en termes de modifications des populations des niveaux de bandes induites par la modulation de la profondeur de potentiel par l'onde sonde (§III.8.2.a). Nous discuterons alors les différents mécanismes de diffraction des ondes pompes sur les réseaux d'observables modulés temporellement par l'onde sonde, et contribuant à la résonance Rayleigh stimulée des spectres de transmission (§III.8.2.b). Nous mettrons ainsi en évidence deux contributions supplémentaires par rapport au cas de la transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ considéré au §III.7.2, liées à la modulation d'alignement du milieu par l'onde sonde. Nous montrerons toutefois que la contribution dominante à la structure Rayleigh du spectre de transmission provient de la diffraction vers l'arrière de l'onde pompe se propageant en sens opposé à la sonde sur le réseau d'orientation modulé temporellement par l'onde sonde, ce qui nous permettra de faire le lien avec l'interprétation donnée au §III.7.2. Nous présenterons alors quelques spectres théoriques (§III.8.2.c), et nous montrerons que le phénomène de dépendance résonnante des populations des niveaux de vibration mis en évidence au §III.8.1 se manifeste par un renversement de la structure Rayleigh du spectre de transmission, et fournit ainsi un moyen expérimental de tester cet effet (§III.8.2.d). Nous discuterons finalement les caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé des mélasses 1D lin_Llin dans la configuration de polarisation II, pour le cas des transitions de moment cinétique entier non nul (§III.8.2.e).

Notre but étant de mettre l'accent sur les différences entre les cas des transitions de moment cinétique entier et de la transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, nous ne reviendrons pas sur les résultats communs aux deux types de transitions (ceux-ci ont été développés en détail au §III.7.2).

[Rq.III-44] Comme nous le discutons en annexe A.III, la configuration de polarisation II est la seule permettant de caractériser rigoureusement l'effet de l'onde sonde sur le milieu en termes de modifications de populations des niveaux de bande. Nous nous limitons ici à cette géométrie d'interaction de l'onde sonde afin de conserver une certaine simplicité dans le traitement de la transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$, par ailleurs compliquée par la forte dégénérescence du niveau fondamental.

a. Modification du milieu par l'onde sonde

Comme nous le montrons en annexe A.III, il est possible dans la configuration de polarisation II de caractériser entièrement l'effet de la sonde sur le milieu en termes de modifications des populations des niveaux de vibrations. L'évaluation de ces modifications est parfaitement analogue au cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. Nous en rappelons donc uniquement les étapes :

- La configuration de polarisation II se caractérise par des modifications de populations identiques dans les différents puits de potentiel (l'onde sonde ne brise pas l'invariance de la mélasse par la transformation de symétrie \mathcal{T} , voir annexe A.III).
- Les modifications de populations peuvent être estimées en très bonne approximation en considérant une géométrie d'expérience à deux sondes respectant mieux les propriétés de symétrie de la mélasse (voir annexe A.III).
- Dans une telle expérience, l'effet du champ sonde correspond uniquement à une modulation temporelle globale de la profondeur de tous les puits de potentiel à la fréquence de battement δ entre pompes et sondes. En d'autres termes, l'effet du champ sonde sur le milieu est de moduler temporellement le paramètre sans dimension V_0/E_R déterminant entièrement les caractéristiques des populations stationnaires des niveaux de vibration à la limite séculaire considérée ici.
- On en déduit alors une estimation qualitative de l'état de la mélasse en présence de l'onde sonde sous la forme d'une modification des populations des niveaux de bande $|M, n, q\rangle$ par rapport à leur valeur stationnaire $\pi_{M,n,q}^{(0)}$ [Rq.III-45] :

$$\pi_{M,n,q}^{(0)} \rightarrow \pi_{M,n,q}^{(0)} + \varepsilon \left(\pi_{M,n,q}^{(1)} e^{-i\delta t} + \text{c.c.} \right) \quad (\text{III.8.2-1})$$

avec :

$$\pi_{M,n,q}^{(1)} = \frac{\gamma_{\text{eff}}}{\gamma_{\text{eff}} - i\delta} (V_0/2E_R) \partial_{V_0/E_R} \pi_{M,n,q}^{(0)} \quad (\text{III.8.2-2})$$

[Rq.III-45] Nous conservons la description suggestive de la mélasse en termes des états $|M, n, q\rangle$ introduits au §III.8.1. Il fait toutefois rappeler que ce choix n'est adapté qu'aux états de vibration les plus bas, et à la limite des puits de potentiel suffisamment profonds. Tous les calculs numériques ont été effectués dans la base $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ introduite en annexe A.III, qui seule permet une description rigoureuse de la mélasse.

Dans cette expression, γ_{eff} désigne le taux caractéristique de relaxation des modifications de populations induites par l'onde sonde [Rq.III-46]. On voit également apparaître la dérivée des populations stationnaires des niveaux de vibration en fonction du paramètre sans dimension V_0/E_R . Or nous avons vu dans le cas d'une transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ que ces populations avaient un comportement résonnant pour certaines valeurs de V_0/E_R . On s'attend donc à ce que l'effet de l'onde sonde sur la mélasse varie rapidement au voisinage des résonances où les dérivées des populations en fonction de V_0/E_R changent de signe. Nous verrons par la suite (§III.8.2.d) que cette propriété est à l'origine d'un phénomène de renversement de la structure Rayleigh stimulée.

b. Mécanisme de diffraction des ondes pompes

Ayant identifié la façon dont le champ sonde module temporellement les populations des niveaux de bandes, nous allons à présent étudier le mécanisme par lequel ces variations de populations conduisent au transfert de puissance vers l'onde sonde. Nous savons que ce transfert fait intervenir la valeur moyenne de l'opérateur \wp_{\parallel} (Eq. (R.5.7)) qui, dans le cas d'une transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$, s'écrit (Eq. (B.III.3-8.a)) :

$$\wp_{\parallel} = \frac{1}{90} \left[(50I - 2J_x^2/\hbar^2) - (11J_z/\hbar - i(J_x J_y + J_y J_x)/\hbar^2) e^{-2ikz} \right] \quad (\text{IV.8.2-3})$$

Comme nous l'avons vu au §III.7.2, chacun des termes de (IV.8.2-3) décrit un processus de diffraction des ondes pompes contribuant *a priori* au transfert de puissance vers la sonde.

Les deux premiers termes de (IV.8.2-3), indépendants de Z , décrivent l'interaction de l'onde pompe se propageant dans le même sens que l'onde sonde avec les modulations de densité (premier terme) et d'alignement (second terme) induites par le faisceau sonde. De même qu'au §III.7.2, le premier terme de (IV.8.2-3) ne contribue pas au transfert de puissance en raison de la conservation de la population totale des niveaux vibrationnels. Le second terme, qui décrit la modification d'indice de l'onde pompe se propageant avec la sonde, a par contre une contribution non nulle semblable à celle de l'orientation dans la configuration de polarisation \perp (voir §III.7.3). Il est en particulier insensible à la localisation atomique et n'introduit donc aucun filtrage des contributions des différents niveaux d'énergie. Notons également son analogie avec l'effet d'alignement mentionné au §II.4.2 et contribuant à la résonance Rayleigh stimulée des vapeurs atomiques.

[Rq.III-46] Nous ne chercherons pas ici à estimer ce taux, qui requiert une analyse détaillée des propriétés dynamiques de la mélasse.

La dépendance spatiale en e^{-2ikZ} des deux derniers termes de (IV.8.2-3) indique un processus de diffraction vers l'arrière de l'onde pompe se propageant en direction opposée à l'onde sonde, et dont la polarisation est modifiée par la modulation d'orientation (troisième terme, identique à celui déjà rencontré au §III.7.2 dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$) et d'alignement (dernier terme) induite par la sonde. De même qu'au §III.7.2, ces processus de diffraction vers l'arrière font essentiellement intervenir les états d'énergie les plus localisés, et s'accompagnent donc d'un phénomène de filtrage des modes dynamiques fortement couplés aux états d'énergie les plus bas, de taux de relaxation plus faibles. Ces processus contribuent au transfert de puissance vers la sonde en raison de la structure anti-ferromagnétique de la mélasse 1D linLin.

On constate également sur l'expression (IV.8.2-3) que les second et dernier termes ont une contribution faible comparés au troisième. On peut donc considérer en bonne approximation que :

Dans la configuration de polarisation II, la structure Rayleigh stimulée des spectres de transmission résulte, comme dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, d'un processus de diffraction vers l'arrière de l'onde pompe se propageant en sens opposé à la sonde sur le réseau d'orientation induit dans le milieu par l'onde sonde.

Il ne faudrait toutefois pas en conclure qu'il en va de même pour toutes les transitions. On peut en effet s'assurer sur l'expression générale (B.III.3-8.a) de l'opérateur $\wp_{||}$ que cette caractéristique est le propre des transitions de moment cinétique élevé. On peut ainsi s'attendre à ce que les termes d'alignement aient une contribution relative plus importante à la structure Rayleigh dans le cas des transitions atomiques de moment cinétique proche de 1. Néanmoins, à la limite des puits de potentiel suffisamment profonds, la contribution du terme d'orientation (sensible à la localisation atomique) sera toujours supérieure à celle de l'alignement, quelle que soit la transition atomique considérée.

Finalement, dans le cas d'une transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ et à la limite des grands désaccords à résonance, on peut exprimer la densité de puissance transférée vers la sonde sous la forme :

$$\mathcal{P} \approx \frac{N \omega V_0^2}{180 E_R} \left(\frac{-\delta \gamma_{\text{eff}}}{\delta^2 + \gamma_{\text{eff}}^2} \right) \left\{ \begin{array}{l} -11 \sum_{\substack{\text{états localisés} \\ (M,n,q)}} \partial_{V_0/E_R} \Pi_{M,n,q}^{(0)} \langle M, n, q | J_z / \hbar | M, n, q \rangle \\ + \sum_{\substack{\text{états localisés} \\ (M,n,q)}} \partial_{V_0/E_R} \Pi_{M,n,q}^{(0)} \langle M, n, q | i (J_x J_y + J_y J_x) / \hbar^2 | M, n, q \rangle \\ -2 \sum_{\substack{\text{états localisés} \\ (M,n,q)}} \partial_{V_0/E_R} \Pi_{M,n,q}^{(0)} \langle M, n, q | J_x^2 / \hbar^2 | M, n, q \rangle \end{array} \right\} \quad (\text{III.8.2-4})$$

La structure Rayleigh résulte donc de la somme de trois contributions. Les deux premières (dont la principale est celle de l'orientation) font intervenir sélectivement les états de vibration localisés, et par suite les modes dynamiques de faible taux de relaxation. On s'attend néanmoins à une différence qualitative entre ces deux contributions. En effet, le premier terme (orientation) fait essentiellement intervenir les niveaux d'énergie les plus bas du potentiel lumineux v_4 qui sont associés en bonne approximation aux sous-niveaux Zeeman $|g, \mu = \pm 4\rangle$ (et possèdent donc un moment angulaire maximal). Par contre, le second terme (alignement) fait intervenir la moyenne sur les états $|M, n, q\rangle$ d'un opérateur proportionnel à $J_+^2 - J_-^2$, qui n'a pas d'éléments de matrice diagonaux dans la base des sous-niveaux Zeeman $|g, \mu\rangle$. En conséquence, les états d'énergie les plus localisés pour lesquels le mélange des différents sous-niveaux Zeeman est faible contribueront très peu au terme d'alignement. Ce terme fait donc intervenir les états d'énergie plus excités qui réalisent le meilleur compromis entre localisation spatiale et mélange des sous-niveaux Zeeman. Enfin, la troisième contribution au transfert de puissance (effet d'indice) est insensible à la localisation atomique et implique l'ensemble des niveaux d'énergie [Rq.III-47].

On s'attend donc, par analogie avec le cas de la transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ considéré au §III.7, à ce que ces trois contributions à la résonance Rayleigh stimulée aient des largeurs différentes. Le terme d'orientation pour lequel le filtrage des états d'énergie les plus bas est le plus efficace sera ainsi associé à un taux γ_{eff} de l'ordre du taux de relaxation des états vibrationnels les plus bas. Le terme d'alignement sera associé à un taux γ_{eff} de l'ordre du taux de

[Rq.III-47] Insistons à nouveau sur le fait que l'emploi de la base des états $|M, n, q\rangle$ n'est pas adapté aux niveaux d'énergie excités. En conséquence, l'écriture du terme d'indice portant sur les états non localisés n'est ici pas rigoureuse. On peut en fait aisément remédier à ce problème en utilisant la base d'états $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ (voir annexe A.III).

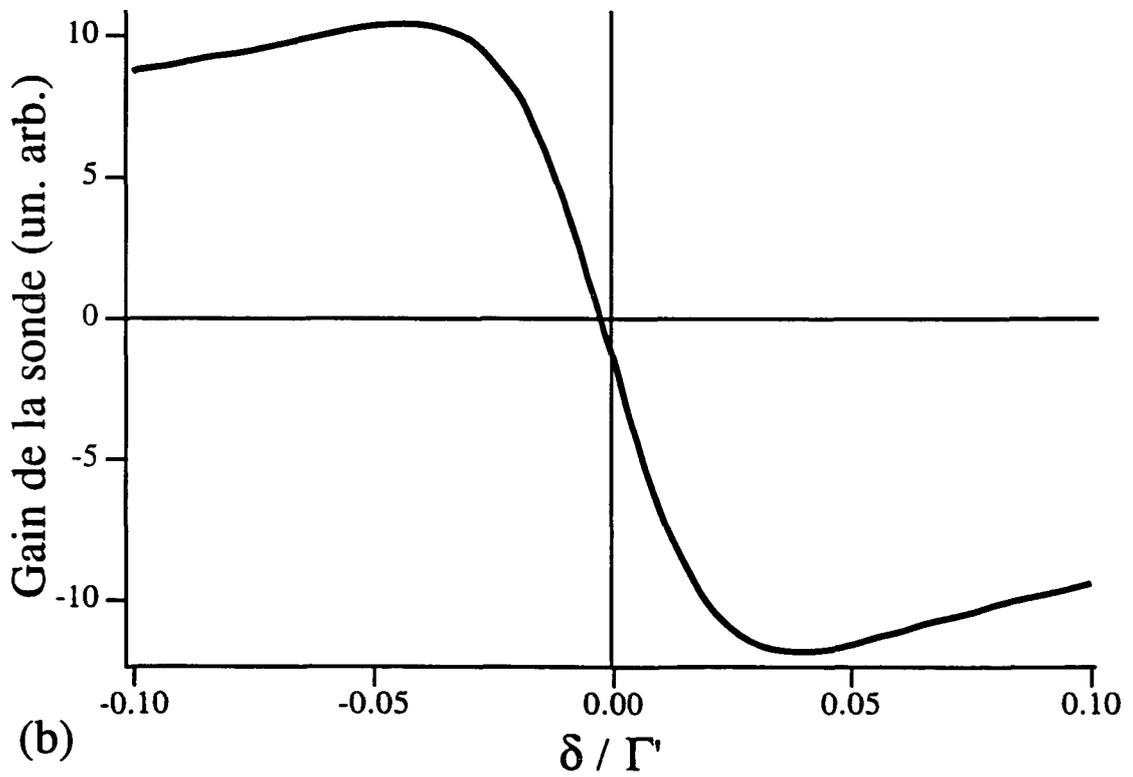
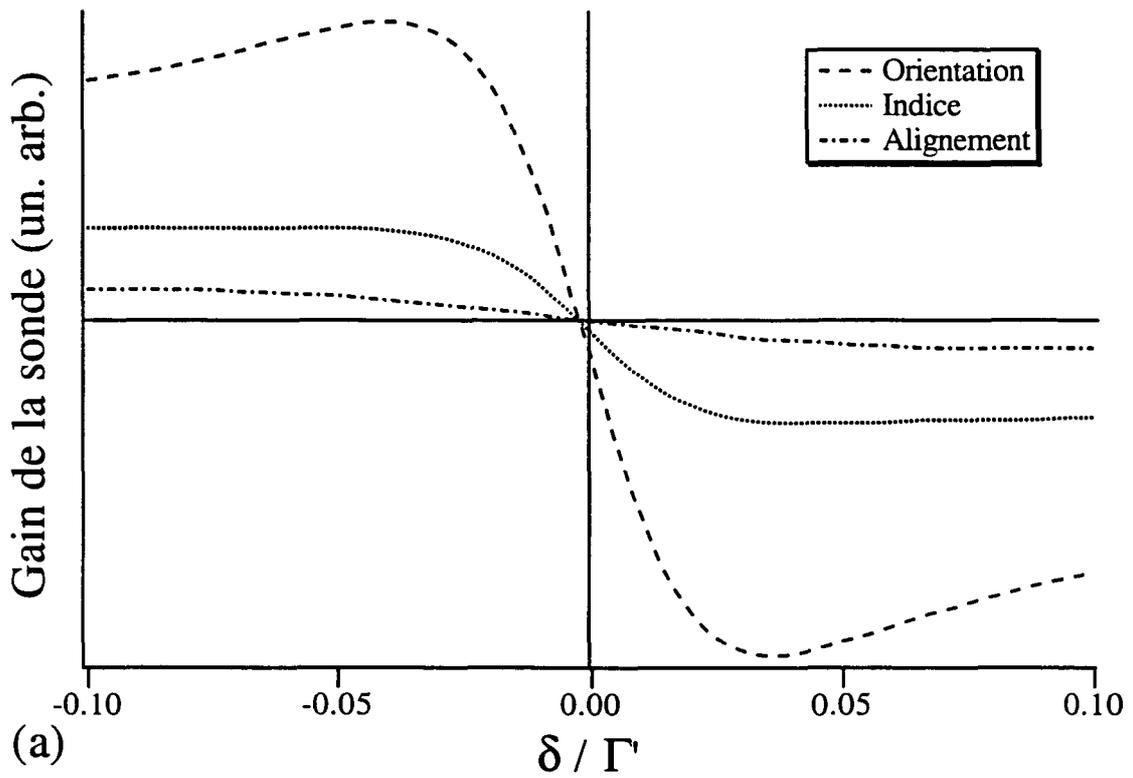
relaxation des états vibrationnels localisés plus excités. Enfin, l'effet d'indice pourra conduire à une résonance de demi-largeur γ_{eff} encore plus importante.

c. Allure du spectre de transmission

Nous présentons ici quelques exemples de spectres Rayleigh théoriques calculés pour diverses valeurs du paramètre V_0/E_R . Nous en interprétons les caractéristiques à l'aide des résultats établis précédemment, et nous discutons l'importance relative des trois processus de diffraction des ondes pompes sur le gain de l'onde sonde. Nous débutons par le cas des puits de potentiel peu profonds ($V_0/E_R = 80$, repéré par le label 1 sur la Fig. III.8.1-2). Nous avons représenté sur la Fig. III.8.2-1 la dépendance du gain Rayleigh de la sonde en fonction du paramètre sans dimension δ/Γ' , en distinguant les contributions liées à l'orientation, à l'alignement et à l'effet d'indice. Nous constatons alors les propriétés suivantes :

- *La contribution de l'orientation est de forme dispersive, de demi-largeur $\approx 0.04 \Gamma'$. Cette demi-largeur est en bon accord avec l'estimation du taux de relaxation du niveau de vibration fondamental déduite de l'Eq. (III.5-8) en remplaçant U_0 par V_0 .*
- *La résonance liée à l'effet d'indice présente des ailes très larges. Ceci résulte de la contribution des états d'énergie très excités, dont les populations sont fortement modifiées par l'onde sonde. On constate effectivement sur la Fig. III.8.1-2 que la valeur $V_0/E_R = 80$ correspond à une mélasse sous le seuil de refroidissement sub-Doppler où les populations des états d'énergie quasi-libres varient très rapidement avec la profondeur de puits [Cas92].*
- *La contribution de l'orientation est très supérieure à celle de l'alignement et à l'effet d'indice. Ce qui est en bon accord avec l'expression (III.8.2-4).*

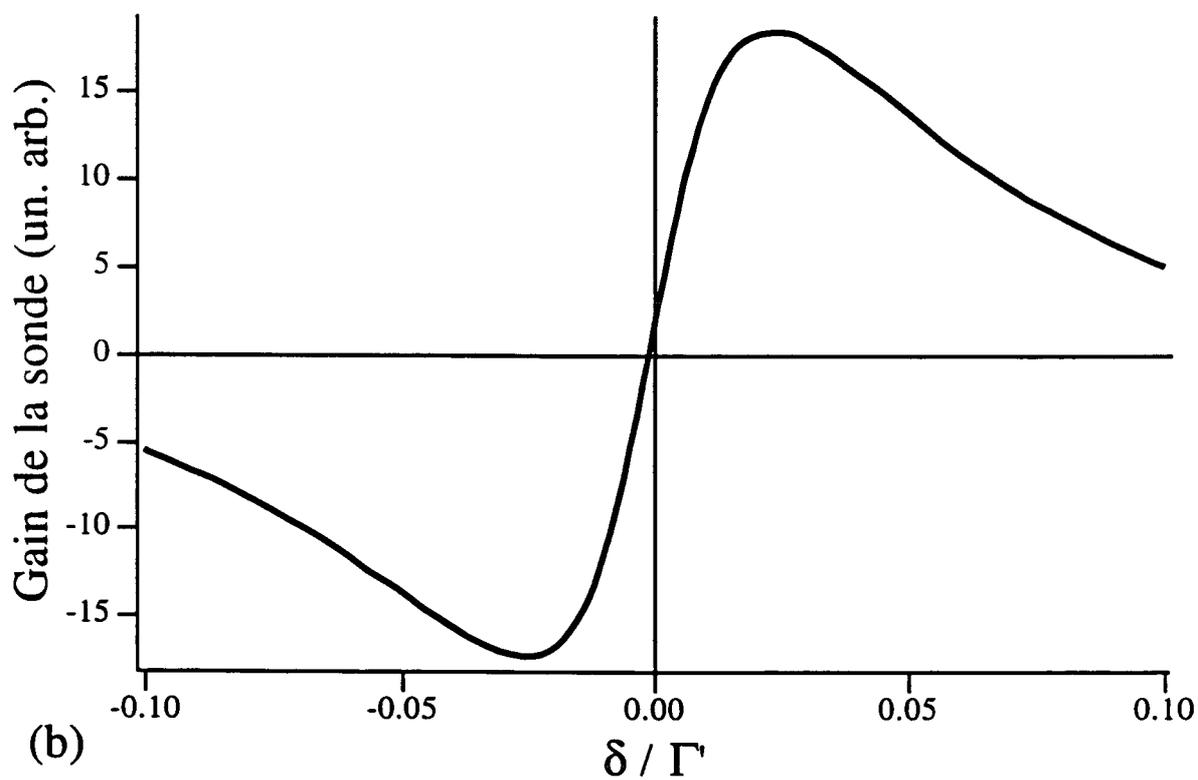
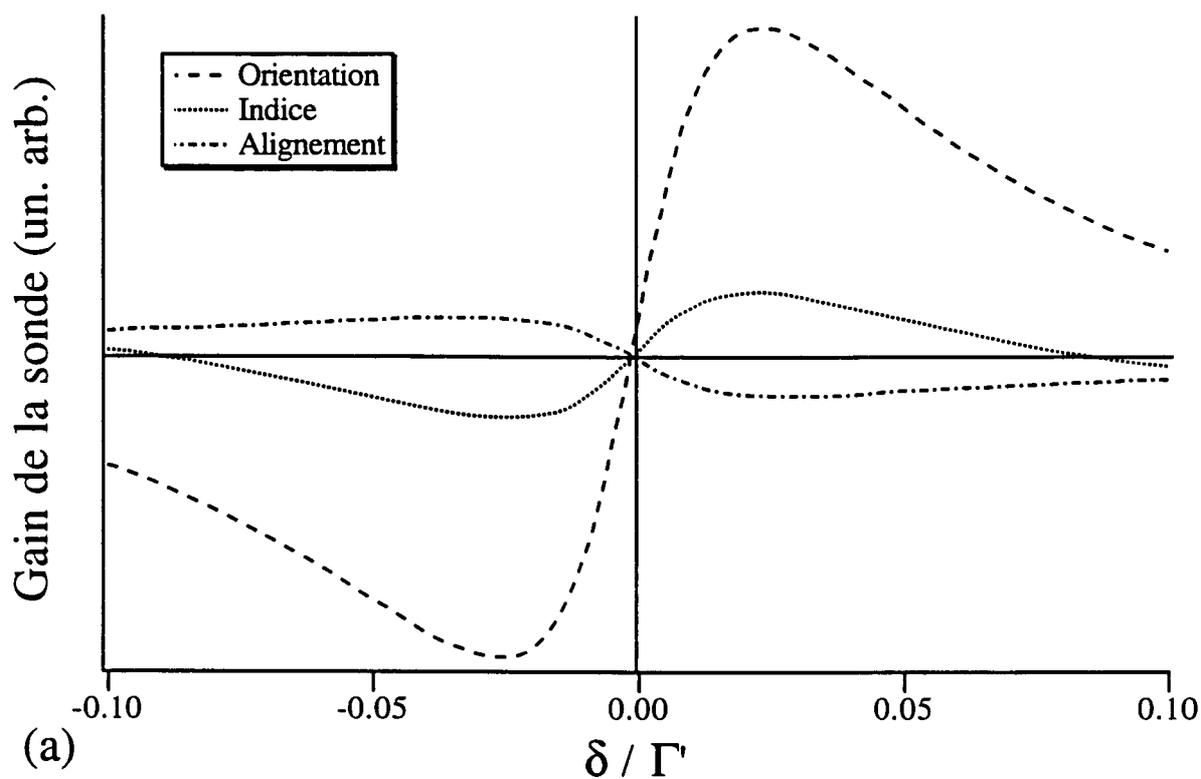
FIG. III.8.2-1 : Gain Rayleigh de l'onde sonde dans la limite des puits de potentiel peu profonds ($V_0/E_R = 80$) en fonction du paramètre sans dimension δ/Γ' . (a) Contributions relatives des processus de diffraction des deux ondes pompes sur la modulation temporelle d'orientation, d'alignement et d'indice induite dans le milieu par l'onde sonde. La contribution de l'orientation est le terme dominant. (b) La structure Rayleigh totale présente une forme dispersive de largeur $\approx 0.04 \Gamma'$ correspondant au taux de relaxation du niveau de vibration fondamental. Ses ailes sont élargies par la contribution de l'effet d'indice. Le spectre a été calculé en prenant en compte les 38 premiers états de bande et en tronquant l'espace des impulsions de $-88 \hbar k$ à $+88 \hbar k$.

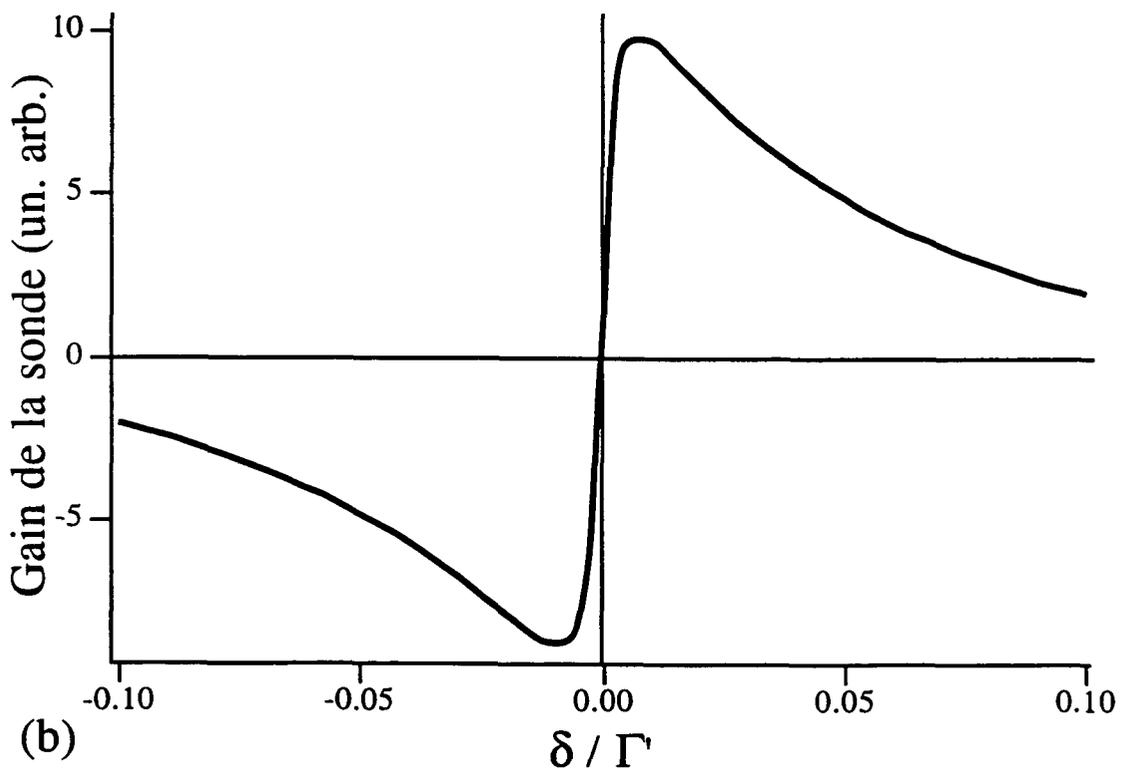
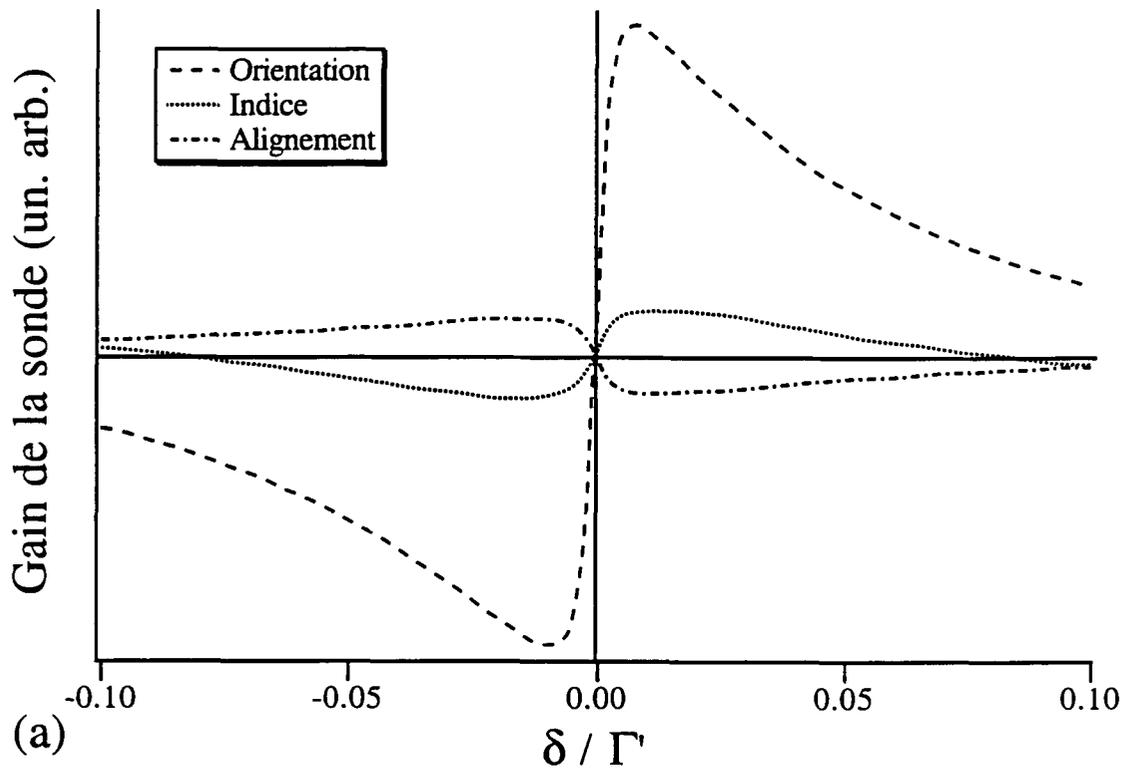


Nous considérons à présent le cas des puits de potentiel profonds ($V_0/E_R = 300$, repéré par le label 2 sur la Fig. III.8.1-2) qui correspond approximativement au cas expérimental de la Fig. III.4-2(a). Nous avons représenté sur la Fig. III.8.2-2 la dépendance du gain Rayleigh de la sonde en fonction du paramètre sans dimension δ/Γ' , en distinguant à nouveau les contributions liées à l'orientation, à l'alignement et à l'effet d'indice. Nous constatons alors les propriétés suivantes :

- *La contribution de l'orientation est de forme dispersive, de demi-largeur $\approx 0.025 \Gamma'$. Cette demi-largeur est en bon accord avec l'estimation du taux de relaxation du niveau de vibration fondamental déduite de l'Eq. (III.5-8) en remplaçant U_0 par V_0 .*
- *Les différentes résonances ne présentent pas d'ailes très larges. Ceci est lié au fait que l'onde sonde modifie peu les populations des états d'énergie excités ($V_0/E_R = 300$ correspond à une situation au-delà du seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler, voir Fig. III.8.1-2).*
- *La structure Rayleigh a un signe opposé à celle de la Fig. III.8.2-1. Cette propriété est liée au changement de signe des dérivées des populations des niveaux localisés en fonction de V_0/E_R entre les deux situations (voir Fig. III.8.1-2) qui, d'après (III.8.2-4), se traduit par un renversement de la résonance Rayleigh.*
- *La structure Rayleigh a un signe opposé au cas expérimental de la Fig. III.4-2(a). Notons de plus que toutes les observations expérimentales effectuées pour des désaccords à résonance variant de -2Γ à -7Γ (cas de la Fig. III.4-2(a)) ont toujours donné lieu à l'observation d'une structure Rayleigh de même signe. Ceci est dû au fait que dans les expériences où l'onde sonde fait un angle *non nul* avec les faisceaux pompes, la contribution principale à la résonance centrale provient des processus Raman stimulés induits par le recul, et conserve donc toujours le même signe en fonction de la profondeur des puits de potentiel.*

FIG. III.8.2-2 : Gain Rayleigh de l'onde sonde dans la limite des puits de potentiel profonds ($V_0/E_R = 300$) en fonction du paramètre sans dimension δ/Γ' . (a) Contributions relatives des processus de diffraction des deux ondes pompes sur la modulation temporelle d'orientation, d'alignement et d'indice induite dans le milieu par l'onde sonde. La contribution de l'orientation est le terme dominant. (b) La structure Rayleigh totale présente une forme dispersive de largeur $\approx 0.025 \Gamma'$ correspondant au taux de relaxation du niveau de vibration fondamental. Elle a un signe opposé à celui de la Fig. III.8.2-1(b). Les conditions de calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.8.2-1.





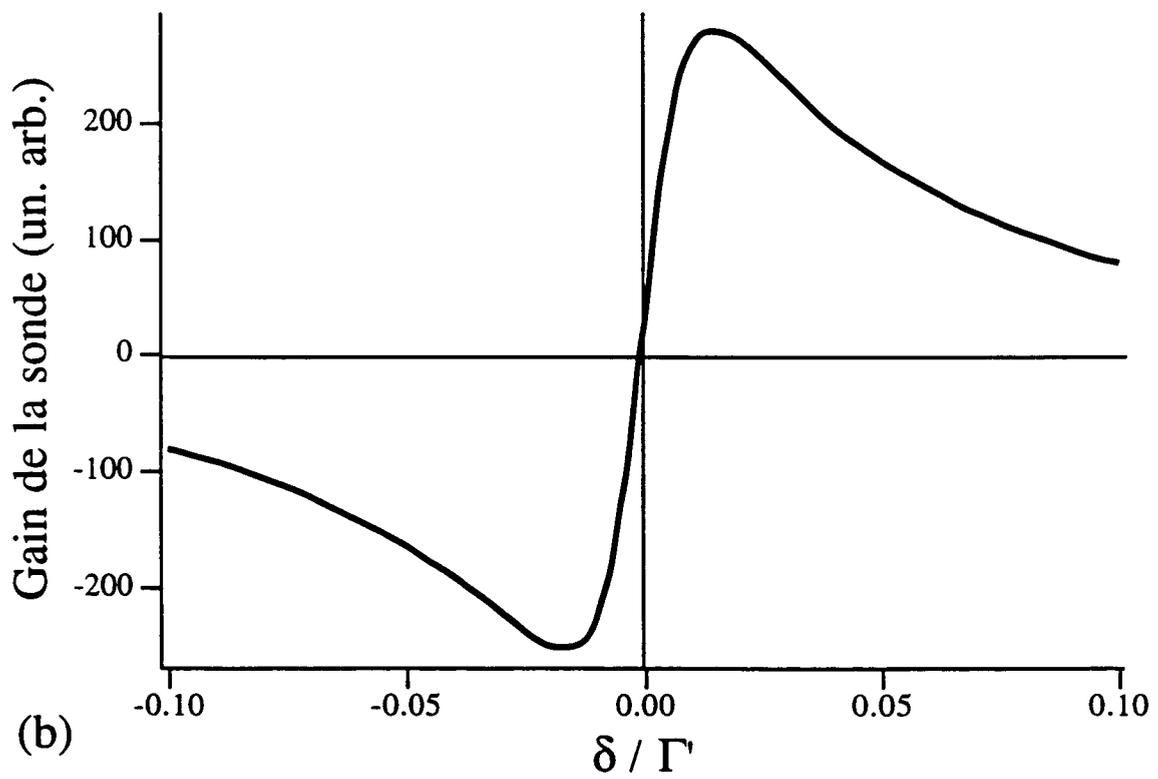
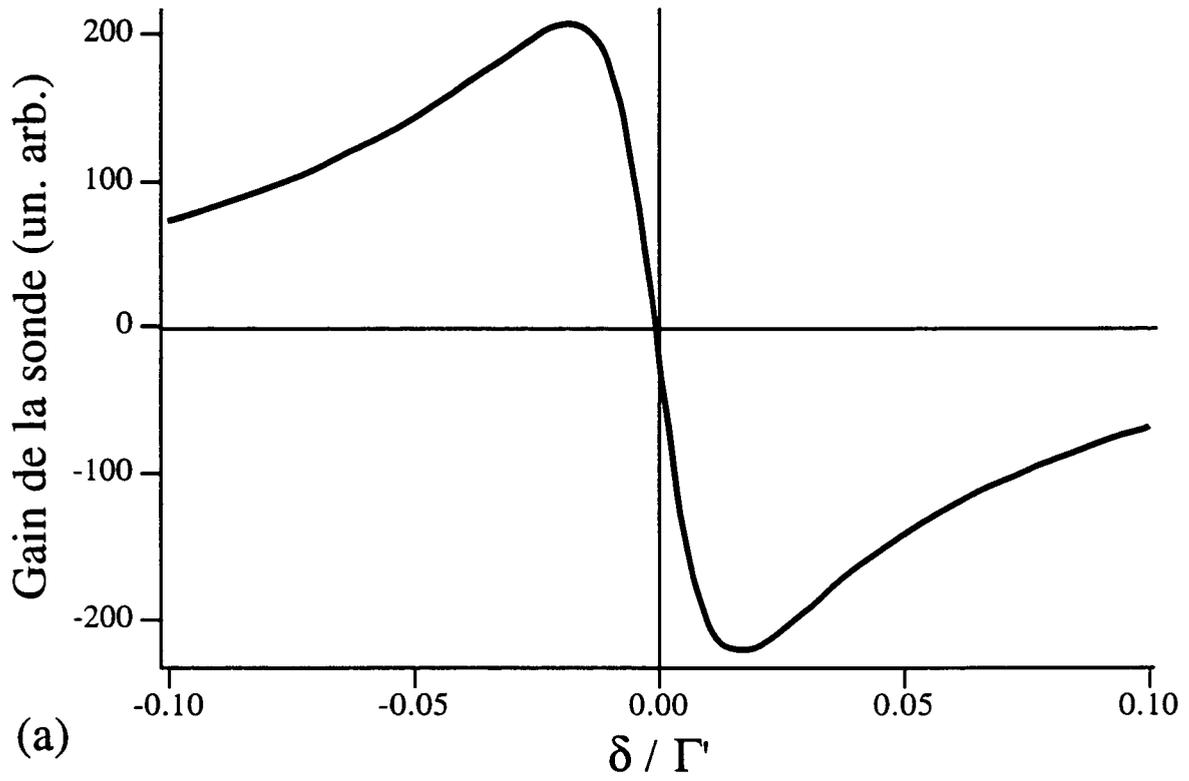
Nous avons également représenté sur la Fig. III.8.2-3 le spectre de transmission correspondant au cas des puits de potentiel très profonds ($V_0/E_R = 1500$, repéré par le label 3 sur la Fig. III.8.1-2). Conformément à l'expression (III.8.2-4) et à la dépendance des populations des niveaux de vibration en fonction de V_0/E_R (Fig. III.8.1-2), nous trouvons une structure Rayleigh de même signe que dans le cas $V_0/E_R = 300$ (les populations des niveaux de vibration les plus bas décroissent avec V_0/E_R).

d. Phénomène de renversement de la résonance Rayleigh stimulée

Nous venons de montrer que conformément à l'expression (III.8.2-4) du transfert de puissance vers l'onde sonde, le changement de signe des dérivées des populations par rapport au paramètre sans dimension V_0/E_R se traduit par un renversement de la structure Rayleigh de part et d'autre du seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler, phénomène que nous avons déjà mis en évidence au §III.7.2 dans le cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. Nous avons montré au §III.8.1 qu'à la limite des transitions atomiques de moment cinétique élevé et des grands désaccords à résonance, la variation des populations des niveaux de vibration présentait un comportement résonnant au voisinage de valeurs particulières de V_0/E_R où se produisait un anticroisement entre niveaux d'énergie. Or ces résonances se traduisent par une inversion du signe des dérivées des populations en fonction de V_0/E_R . On s'attend donc à ce que la structure Rayleigh du spectre de transmission s'inverse de part et d'autre d'une telle résonance.

Nous illustrons cette propriété sur le cas de la résonance située au voisinage de $V_0/E_R = 600$ (Fig. III.8.1-3). Nous avons représenté sur la Fig. III.8.2-4 l'allure de la résonance Rayleigh stimulée de part et d'autre de la résonance. Le spectre de la Fig. III.8.2-4(a) correspond à la valeur $V_0/E_R = 600$ (label 4 sur la Fig. III.8.1-3) située sur le flanc montant de la résonance (dérivées des populations des niveaux de vibration par rapport à V_0/E_R positives), tandis que le spectre de la Fig. III.8.2-4(b) correspond à la valeur $V_0/E_R = 616$ (label 5 sur la Fig. III.8.1-3) située sur le flanc descendant de la résonance (dérivées des populations des niveaux de vibration par rapport à V_0/E_R négatives). On constate bien un phénomène de renversement de la structure Rayleigh stimulée.

FIG. III.8.2-3 : Gain Rayleigh de l'onde sonde dans la limite des puits de potentiel très profonds ($V_0/E_R = 1500$) en fonction du paramètre sans dimension δ/Γ' . (a) Contributions relatives des processus de diffraction des deux ondes pompes sur la modulation temporelle d'orientation, d'alignement et d'indice induite dans le milieu par l'onde sonde. La contribution de l'orientation est le terme dominant. (b) La structure Rayleigh totale présente une forme dispersive de largeur $\approx 0.01 \Gamma'$ correspondant au taux de relaxation du niveau de vibration fondamental. Les conditions de calcul sont les mêmes que pour la Fig. III.8.2-1.



On remarque également par comparaison de la Fig. III.8.2-4 et des Figs III.8.2-1, III.8.2-2 et III.8.2-3 que l'amplitude de la structure Rayleigh est considérablement plus importante au voisinage de la résonance de la population du niveau vibrationnel fondamental. Ceci est lié au fait que cette résonance étant très étroite (voir Figs III.8.1-2 et III.8.1-3), la dérivée par rapport à V_0/E_R de la population du niveau de vibration fondamental, et par suite l'amplitude de la structure Rayleigh (voir Eq. (III.8.2-4)), devient très grande.

On voit finalement que la spectroscopie Rayleigh stimulée de la mélasse optique dans la configuration de polarisation II constitue un moyen expérimental de mettre en évidence le phénomène de dépendance résonnante des populations en fonction de la profondeur de potentiel. Il apparaît toutefois qu'une observation expérimentale de cet effet soit difficile car elle suppose de travailler à la limite des très grands désaccords à résonance (limite séculaire) et de disposer de lasers de très forte puissance (pour maintenir une valeur de V_0/E_R adéquate). Il semble par contre que l'observation d'une structure centrale ayant le signe des résonances des Figs. III.8.2-2 et III.8.2-3 soit plus simple à observer (en dehors des anticroisements, la condition de sécularité est moins restrictive). Toutefois, la difficulté principale d'une telle expérience étant l'élimination de la résonance Raman induite par le recul qui masque dans la pratique la résonance Rayleigh discutée ici, il semble plus approprié d'effectuer une telle expérience dans le cas d'une mélasse optique à trois dimensions où le confinement des atomes dans toutes les directions de l'espace supprime la composante Raman induite par le recul du spectre.

FIG. III.8.2-4 : Renversement de la structure Rayleigh stimulée du spectre de transmission au voisinage de la résonance de population de la Fig. III.8.1-3. (a) Partie montante de la résonance ($V_0/E_R = 600$, label 4 sur la Fig. III.8.1-3). La résonance Rayleigh a le même signe que sur la Fig. III.8.2-1. (b) Partie descendante de la résonance ($V_0/E_R = 616$, label 5 sur la Fig. III.8.1-3). La résonance Rayleigh a le même signe que sur la Fig. III.8.2-2. On constate par comparaison avec les Figs III.8.2-1-2-3 (mêmes échelles arbitraires pour le gain de la sonde) que l'amplitude de la structure Rayleigh varie de manière résonnante au voisinage de la résonance de populations.

e. Caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé

Comme nous l'avons remarqué au cours de cette étude, les caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé des mélasses optiques 1D lin⊥lin dans la configuration de polarisation II dépendent peu du choix de la transition atomique. De petites différences par rapport au cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ existent pourtant et peuvent se résumer en deux points :

- Deux processus de diffraction des ondes pompes supplémentaires contribuent au transfert de puissance vers l'onde sonde. Ils sont liés à la modulation de l'alignement du milieu par l'onde sonde. L'un correspond à une modification d'indice de l'onde pompe se propageant avec la sonde. L'autre à une diffraction vers l'arrière associée à une modification de polarisation de l'onde pompe se propageant en sens opposé à la sonde. Dans le cas des transitions atomiques de moment cinétique élevé, leur contribution est très faible devant celle de l'orientation.
- Dans le cas des transitions atomiques de moment cinétique élevé, l'existence de résonances sur les populations des niveaux de vibration en fonction de la profondeur de potentiel se manifeste par des renversements de la structure Rayleigh stimulée.

Mentionnons également que dans le cas des transitions atomiques de moment cinétique élevé, nous n'avons pas clairement mis en évidence sur les spectres Rayleigh la contribution de modes dynamiques de type diffusif semblables à ceux rencontrés dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ [Rq.III-48].

[Rq.III-48] Nous n'avons toutefois exploré que le cas d'une transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$. De plus, des problèmes d'instabilité numérique nous ont empêché de déterminer l'allure des spectres Rayleigh à la limite des puits de potentiel très peu profonds. Nous sommes simplement en mesure d'affirmer qu'aucun mode de type diffusif ne se manifeste clairement lors du franchissement du seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler, comme c'est le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ (voir §III.7.2).

9. Conclusion

Nous avons donné dans ce chapitre une interprétation physique des spectres de transmission de l'onde sonde à travers une mélasse optique 1D lin \perp lin, à partir d'un modèle utilisant une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$. Les spectres présentent des résonances différentes selon que la polarisation de l'onde sonde est \parallel ou \perp à celle de l'onde pompe avec laquelle elle se propage. Ces résonances fournissent des informations importantes sur les propriétés de la mélasse :

- L'existence de transitions Raman stimulées reflète la quantification du mouvement atomique dans les puits du potentiel lumineux. Leur position donne accès à la fréquence d'oscillation des atomes au fond des puits de potentiel. Leur largeur prouve la localisation des atomes à une échelle inférieure à la longueur d'onde. La position des harmoniques montre l'anharmonicité du potentiel.
- Dans la configuration de polarisation \parallel , la présence d'une résonance Rayleigh stimulée est liée à l'existence d'un ordre anti-ferromagnétique dans la mélasse. Le signe de la résonance Rayleigh caractérise la dépendance des populations des niveaux de vibration en fonction de la profondeur des puits du potentiel lumineux. Dans les expériences, cette structure est toutefois masquée par une résonance Raman induite par le recul liée à l'emploi d'un angle non nul entre pompes et sonde.
- Dans la configuration de polarisation \perp , la forme en falaise de la résonance Rayleigh montre l'existence de plusieurs constantes de temps dans la réponse dynamique de la mélasse.
- Dans le cas des transitions atomiques de moment cinétique élevé, et de la configuration de polarisation \parallel , le phénomène de dépendance résonnante des populations des niveaux vibrationnels en fonction de la profondeur de potentiel se traduit sur les spectres de transmission par un renversement de la structure Rayleigh. Cet effet n'est observable qu'à très grand désaccord à résonance.

A N N E X E A . I I I

**PROPRIÉTÉS DE SYMÉTRIE
DES EXPÉRIENCES DE
SPECTROSCOPIE POMPE-SONDE**

1. Introduction

Nous considérons le cas des mélasses optiques 1D lin⊥lin, dont le spectre Rayleigh est étudié au moyen d'une onde sonde se propageant dans la direction de l'une des ondes pompes. Cette étude est en fait compliquée par l'utilisation d'un faisceau sonde unique qui brise certaines propriétés de symétrie du système, rendant ainsi les modifications du milieu par l'onde sonde difficiles à caractériser. Nous allons toutefois montrer ici que, sous réserve de vérification de certaines propriétés du terme d'interaction de la sonde avec le milieu, la modification de l'état de la mélasse par une sonde unique σ_I est analogue à celle σ_{II} , induite par *deux* faisceaux sondes cohérents entre eux, et respectant les propriétés de symétrie de la mélasse. La substitution de cette situation symétrique au problème d'origine permet alors de simplifier considérablement l'étude des modifications de populations induites par le champ sonde, en permettant par exemple d'utiliser la grande similitude entre champ électrique total en présence ou en absence des deux sondes pour déduire $\sigma_I \approx \sigma_{II}$ à partir des caractéristiques de la matrice densité stationnaire $\sigma_{st}^{(0)}$ du milieu en présence des pompes seules, et donc le spectre Rayleigh de la mélasse (voir §III.7.2.a).

Nous commencerons tout d'abord par rappeler les propriétés de symétrie des mélasses 1D lin⊥lin, et nous discuterons la possibilité de décrire le système uniquement en termes de populations d'états d'énergie particuliers (§A.III.2). Nous décrirons ensuite les conditions et la procédure de symétrisation de l'expérience réelle (I) utilisant une sonde unique, en une expérience (II) utilisant deux ondes sondes convenablement choisies, et nous montrerons que ces deux situations correspondent à des modifications analogues de l'état de la mélasse (§A.III.3). Nous nous restreindrons ici à l'étude de la transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ (qui permettra de montrer l'équivalence entre les situations expérimentales envisagées au §III.7 (Figs III.7.2-1 et III.7.3-1)), et des transitions $J_g \rightarrow J_e=J_g+1$ de moment cinétique J_g entier.

2. Propriétés de symétrie des mélasses 1D lin \perp lin

2.1. Généralités [Cas92]

L'ensemble des propriétés d'une mélasse optique 1D peuvent se décrire au moyen de l'équation d'évolution (R.3.2-6) de la matrice densité atomique réduite à l'état fondamental σ , qu'il est commode d'écrire sous la forme :

$$\dot{\sigma} = \mathcal{L} \cdot \sigma \quad (\text{A.III.2.1-1})$$

où l'opérateur \mathcal{L} , indépendant du temps, agit dans l'espace de Liouville des matrices densité. Les propriétés de symétrie de la mélasse se traduisent par l'invariance de l'équation d'évolution (A.III.2.1-1) par certaines transformations unitaires S agissant sur les degrés de liberté internes et externes de l'atome :

$$S(\mathcal{L} \cdot \sigma) S^\dagger = \mathcal{L} \cdot (S \sigma S^\dagger) \quad \forall \sigma \quad (\text{A.III.2.1-2})$$

Dans le cas des mélasses 1D lin \perp lin en l'absence de sonde, on peut s'assurer que le groupe de symétrie le plus gros du système est engendré par les deux transformations :

$$T|z\rangle \otimes |\mu\rangle = |z + \lambda/4\rangle \otimes |-\mu\rangle \quad (\text{A.III.2.1-3})$$

$$I|z\rangle \otimes |\mu\rangle = |-z\rangle \otimes e^{-i\mu\frac{\pi}{2}}|\mu\rangle \quad (\text{A.III.2.1-4})$$

où $|\mu\rangle$ désigne le sous-niveau Zeeman de nombre quantique magnétique μ , Oz étant choisi comme axe de quantification. T translate le centre de masse atomique de $\lambda/4$, et change le moment cinétique interne selon Oz en son opposé. Cette propriété de symétrie est liée à la structure anti-ferromagnétique de la mélasse, où le champ électrique total est alternativement polarisé circulairement σ^+ et σ^- , tous les $\lambda/4$. I décrit une inversion spatiale le long de l'axe Oz, et une rotation interne d'angle $\pi/2$. Cette transformation rend compte de l'invariance de la mélasse par échange des deux ondes pompes et rotation de leur polarisation d'un angle $\pi/2$. On notera que T et I ne commutent pas en général. Remarquons également que l'invariance du système par T^2 et I^2 décrit respectivement la périodicité $\lambda/2$ du potentiel optique de la mélasse, et l'existence de deux familles de sous-niveaux Zeeman couplés entre eux par les champs lasers n'ayant que des composantes de polarisation circulaire.

La connaissance de ces propriétés de symétrie permet alors de déterminer une base d'états dans laquelle, à la limite séculaire que nous considérerons ici, l'état de la mélasse peut être

entièrement décrit en termes de populations. Cette détermination passe par la diagonalisation du Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ associé aux déplacements lumineux induits par les ondes pompes (R.3.2-7) :

$$H_{\text{eff}}^{(0)} = \frac{P^2}{2M} + \hbar\Delta s_0 (\cos(kZ)d_{-1}^- + i\sin(kZ)d_1^-) (\cos(kZ)d_{-1}^+ - i\sin(kZ)d_1^+) \quad (\text{A.III.2.1-5})$$

mais s'effectue de manière différente selon la valeur du moment cinétique J_g de la transition atomique $J_g \rightarrow J_e = J_g + 1$ considérée. Nous distinguerons ici les cas $J_g = 1/2$ et $J_g > 0$ entier.

2.2. Cas d'une transition atomique $J_g = 1/2 \rightarrow J_e = 3/2$

Dans le cas d'une transition atomique $J_g = 1/2 \rightarrow J_e = 3/2$, les deux sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental $|\mu = \pm 1/2\rangle$ ne sont pas couplés par les champs lasers, ce qui rend possible la diagonalisation du Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ à état interne fixé [Rq.A.III-1]. En raison de l'invariance de $H_{\text{eff}}^{(0)}$ par translation spatiale de $\lambda/2$, les états d'énergie s'organisent selon plusieurs bandes d'indice n , constituées d'un continuum de niveaux repérés à l'aide de l'indice de Bloch q appartenant à la première zone de Brillouin ($-k < q \leq k$). Cet indice caractérise la façon dont un état se transforme par \mathcal{T}^2 :

$$\mathcal{T}^2 |n, q, \mu\rangle = e^{-iq\lambda/2} |n, q, \mu\rangle \quad (\text{A.III.2.2-1})$$

Il est également intéressant de caractériser la façon dont les états $|n, q, \mu\rangle$ se transforment par l'opérateur I , qui ne commute pas avec \mathcal{T} . On utilise pour cela l'identité :

$$I^\dagger \mathcal{T} I = \mathcal{T}^\dagger I^2 \quad (\text{A.III.2.2-2})$$

qui conduit immédiatement à la relation :

$$\mathcal{T}^2 [I |n, q, \mu\rangle] = e^{iq\lambda/2} [I |n, q, \mu\rangle] \quad (\text{A.III.2.2-3})$$

En comparant (A.III.2.2-3) à (A.III.2.2-1), on constate que l'état $I |n, q, \mu\rangle$ est proportionnel à $|n, -q, \mu\rangle$:

$$I |n, q, \mu\rangle = e^{i\varphi} |n, -q, \mu\rangle \quad (\text{A.III.2.2-4})$$

où φ est une phase dépendant de l'état $|n, q, \mu\rangle$. Comme par ailleurs $H^{(0)}$ commute avec I , nous en concluons que les niveaux d'énergie $|n, q, \mu\rangle$ et $|n, -q, \mu\rangle$ sont *dégénérés*.

[Rq.A.III-1] Il suffit en fait de diagonaliser $H_{\text{eff}}^{(0)}$ uniquement pour $\mu = -1/2$. Les états propres de même énergie associés à l'autre sous-niveau Zeeman s'en déduisent alors par translation de $\lambda/4$.

Nous montrons à présent que la matrice densité stationnaire $\sigma_{st}^{(0)}$ de la mélasse (en l'absence de sonde) est diagonale dans la base $|n, q, \mu\rangle$. A la limite séculaire, on sait déjà que les cohérences entre états d'indices de bandes n différents peuvent être négligées. De plus, en raison de l'invariance de $\sigma_{st}^{(0)}$ par \mathcal{T}^2 , on peut affirmer qu'aucune cohérence n'existera dans le régime stationnaire entre des états d'indices de Bloch q différents. Le spectre d'énergie montre également l'existence au niveau du continuum de paires d'états quasi-dégénérés de même indice q . On peut toutefois montrer que ces états sont de parité différentes, et donc qu'aucune cohérence n'est créée entre eux (\mathcal{L} étant invariant par parité dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$) [Cas92]. Nous décrivons donc finalement la matrice densité stationnaire de la mélasse $\sigma_{st}^{(0)}$ uniquement en termes de populations des états $|n, q, \mu\rangle$:

$$\sigma_{st}^{(0)} = \sum_{n, q, \mu} \pi_{n, q, \mu}^{(0)} |n, q, \mu\rangle \langle n, q, \mu| \quad (\text{A.III.2.2-5})$$

Comme nous l'avons déjà mentionné au §III.3, les populations stationnaires $\pi_{n, q, \mu}^{(0)}$ s'obtiennent aisément par résolution du système d'équations de taux (III.3-10).

2.3. Cas d'une transition atomique de moment cinétique J_g entier

Dans le cas d'une transition atomique de moment cinétique J_g entier, on utilise le fait que les opérateurs $H_{eff}^{(0)}$, \mathcal{T} et I^2 commutent deux à deux, et qu'ils peuvent donc être diagonalisés simultanément. On détermine ainsi une base d'états d'énergie propres $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ dont les indices n , q ont la même signification que dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, et sont liés à la structure de bandes du spectre d'énergie. L'indice ζ décrit l'action de \mathcal{T} sur les niveaux $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ qui, d'après (A.III.2.2-3), s'écrit :

$$\mathcal{T}|n, q, \zeta, \eta\rangle = \zeta e^{-iq\lambda/4} |n, q, \zeta, \eta\rangle \quad (\text{A.III.2.3-1})$$

ζ peut prendre les valeurs $+1$ ou -1 . La présence de cet indice, caractéristique des transitions atomiques de moment cinétique J_g entier, est liée au couplage par les lasers des puits de potentiel voisins distants de $\lambda/4$. L'indice η caractérise quant à lui l'action de I^2 sur les états d'énergie. Il prend la valeur $+1$ pour la famille des niveaux de nombre quantique magnétique pair, et la valeur -1 pour celle des niveaux de nombre quantique magnétique impair. On peut également caractériser la façon dont les états $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ se transforment par l'opérateur I , et dont nous savons qu'il ne commute généralement pas avec \mathcal{T} . On utilise pour cela l'identité (A.III.2.2-2) qui conduit sans difficulté à la relation :

$$\mathcal{T}[I|n, q, \zeta, \eta\rangle] = \eta \zeta e^{iq\lambda/4} [I|n, q, \zeta, \eta\rangle] \quad (\text{A.III.2.3-2})$$

qui, comparée à (A.III.2.2-3) et (A.III.2.3-1), montre que l'on a :

$$I|n, q, \zeta, \eta\rangle = e^{i\varphi}|n, -q, \eta, \zeta, \eta\rangle \quad (\text{A.III.2.3-3})$$

où φ est une phase dépendant de l'état $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ considéré. On constate que sauf valeurs particulières de l'indice de Bloch, les états $I|n, q, \zeta, \eta\rangle$ et $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ correspondent à des valeurs propres *différentes* de \mathcal{T} [Rq.A.III-2]. Comme par ailleurs $H_{\text{eff}}^{(0)}$ commute avec I , nous en concluons que ces niveaux d'énergie sont *dégénérés*.

Nous montrons à présent que la matrice densité stationnaire $\sigma_{\text{st}}^{(0)}$ de la mélasse (en l'absence de sonde) est diagonale dans la base $|n, q, \zeta, \eta\rangle$. Comme précédemment, les cohérences entre états d'indices de bandes n différents peuvent être négligées à la limite séculaire [Rq.A.III-3]. De plus, en raison de l'invariance de $\sigma_{\text{st}}^{(0)}$ par les transformations \mathcal{T} et I , on peut affirmer qu'aucune cohérence n'existera dans le régime stationnaire entre des états d'indices q , ζ ou η différents. On trouve à nouveau dans le continuum des paires d'états quasi-dégénérés de mêmes indices q , ζ , et η , mais cette fois sans qu'aucune propriété de symétrie ne permette de garantir l'absence de cohérences entre ces niveaux. Afin de conserver la simplicité du problème, nous ferons ici l'hypothèse que ces cohérences ne jouent pas un rôle fondamental dans la dynamique du système (particulièrement à la limite des puits de potentiel profonds), et qu'elles pourront être négligées. Nous décrivons donc finalement la matrice densité stationnaire de la mélasse $\sigma_{\text{st}}^{(0)}$ uniquement en termes de populations des états $|n, q, \zeta, \eta\rangle$:

$$\sigma_{\text{st}}^{(0)} = \sum_{n, q, \zeta, \eta} \pi_{n, q, \zeta, \eta}^{(0)} |n, q, \zeta, \eta\rangle \langle n, q, \zeta, \eta| \quad (\text{A.III.2.3-4})$$

Les populations stationnaires $\pi_{n, q, \zeta, \eta}^{(0)}$ s'obtiennent par résolution d'un système d'équations de taux du type de (III.3-10).

[Rq.A.III-2] Ces paires d'états présentent certaines analogies avec les couples de niveaux pair et impair d'un potentiel à deux bosses.

[Rq.A.III-3] La condition de sécularité est toutefois généralement beaucoup plus restrictive que dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, en raison de quasi-dégénérescences entre bandes de même indice η , mais associées à des potentiels différents (voir §III.8.1). Elle peut ainsi requérir des désaccords à résonance considérables.

3. Procédure de symétrisation des expériences pompe-sonde

3.1. Généralités

Le fait de pouvoir entièrement caractériser l'état stationnaire de la mélasse optique en l'absence de sonde par la simple donnée des populations de ses niveaux d'énergie, ce qui repose essentiellement sur l'invariance du système par \mathcal{T} , conduit à l'évidence à une très grande simplification dans la détermination de ses caractéristiques d'équilibre (comme par exemple sa température, sa distribution stationnaire d'impulsion ou de densité, etc...). Il ne garantit toutefois aucune simplicité dans le calcul de l'état du système en présence d'une onde sonde. Pour que cet état reste descriptible en termes de populations des niveaux d'énergie, il faut en effet que l'interaction de la sonde avec le milieu possède également la propriété d'invariance par I^2 (ce qui est toujours le cas pour une onde sonde se propageant dans la même direction que l'un des faisceaux pompes) et par \mathcal{T} (ou, dans le cas particulier d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, celle moins restrictive par \mathcal{T}^2 [Rq.A.III-4]). Les propriétés de symétrie de cette interaction étant identiques à celles de l'opérateur \wp défini au §R.5, nous pouvons affirmer que seules les géométries d'expériences pompe-sonde pour lesquelles :

$$\mathcal{T} \wp \mathcal{T}^\dagger = \wp \quad (\text{A.III.3.1-1})$$

ainsi que dans le cas particulier d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$:

$$\mathcal{T} \wp \mathcal{T}^\dagger = -\wp \quad (\text{A.III.3.1-2})$$

n'induiront aucune cohérence entre les niveaux d'énergie $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ [Rq.A.III-5], [Rq.A.III-6]. Il est aisé de vérifier que seule la configuration de polarisation \parallel vérifie la condition (A.III.3.1-1), tandis que (A.III.3.1-2) est associée à la configuration de polarisation \perp . Dans ces situations particulières, qui seules nous intéresseront ici, la matrice densité atomique σ_I en présence de la sonde prend donc la forme :

$$\sigma_I = \sigma_{st}^{(0)} + \varepsilon \left(\sigma_I^{(1)} e^{-i\delta t} + \text{h.c.} \right) \quad (\text{A.III.3.1-3})$$

[Rq.A.III-4] Nous avons en effet vu que pour une telle transition, l'invariance du système par \mathcal{T}^2 suffit seule à garantir le caractère diagonal de la matrice densité.

[Rq.A.III-5] Excepté pour certains couples d'états quasi-libres déjà mentionnés, mais dont on ne tiendra pas compte.

[Rq.A.III-6] Nous employons la notation la plus générale $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ pour les états d'énergie. Il suffit de remplacer $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ par $|n, q, \mu\rangle$ dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$.

avec :

$$\sigma_I^{(1)} = \sum_{n,q,\zeta,\eta} \pi_{n,q,\zeta,\eta}^{(1)} |n,q,\zeta,\eta\rangle \langle n,q,\zeta,\eta| \quad (\text{A.III.3.1-4})$$

On se trouve donc dans une situation particulièrement simple où il suffit de connaître les modes propres de relaxation des populations, obtenus par diagonalisation de l'opérateur \mathcal{L} en l'absence de sonde restreint aux éléments diagonaux de la matrice densité, pour entièrement caractériser l'état de la mélasse en présence de la sonde.

Malgré cette propriété, la détermination rigoureuse des modifications de populations $\pi_{n,q,\zeta,\eta}^{(1)}$ reste assez complexe, et nécessite le recours au calcul numérique [Cou92]. Il serait pourtant souhaitable de disposer d'un moyen qualitatif simple d'évaluer directement l'effet de l'onde sonde sur le milieu. Or les seules situations où il est véritablement aisé de le faire sont celles où le champ sonde résulte de la superposition de deux faisceaux sondes parfaitement cohérents, et ayant des caractéristiques analogues à celles des deux ondes pompes. Il est en effet possible dans ces cas d'interpréter l'effet de la sonde sur le milieu par une modulation temporelle des amplitudes des ondes pompes, et donc de déterminer $\pi_{n,q,\zeta,\eta}^{(1)}$ en connaissant simplement la dépendance des populations stationnaires $\pi_{n,q,\zeta,\eta}^{(0)}$ en fonction de ces amplitudes (voir §III.7.2.a). Nous allons donc essayer de comparer l'état du système σ_{II} dans ces cas simples (II) à deux ondes sondes, à celui σ_I des situations réelles (I) à onde sonde unique, dans le but de caractériser σ_I par la connaissance de σ_{II} .

Les caractéristiques géométriques de l'onde sonde étant choisies de manière à satisfaire la relation (A.III.3-1) (ou les cas échéant (A.III.3.1-2)), nous considérons donc une nouvelle géométrie d'expérience (II) utilisant deux ondes sondes, dont la première n'est autre que la sonde unique de l'expérience réelle (I), et la seconde est telle que son interaction avec le milieu est décrite par le transformé par I du terme d'interaction de la sonde unique avec le milieu. Il sera de plus commode de choisir les deux ondes sondes d'amplitudes égales à la moitié de celle de la sonde unique. Cette procédure de symétrisation conduit alors bien à deux ondes sondes se propageant en sens opposés et de polarisations linéaires orthogonales, ayant des caractéristiques analogues à celles des faisceaux pompes. D'après la théorie de la réponse linéaire, on sait que la modification du milieu induite par l'action simultanée des deux ondes sondes est égale la somme des modifications individuelles créées par chacune d'elles. L'état du milieu dans la situation (II) aura donc la forme suivante :

$$\sigma_{II} = \sigma_{st}^{(0)} + \frac{\mathcal{E}}{2} \left(\sigma_I^{(1)} e^{-i\delta t} + \sigma_I^{(1)} e^{-i\delta t} + \text{h.c.} \right) \quad (\text{A.III.3.1-5})$$

Dans cette expression, $\sigma_r^{(1)}$ décrit les modifications de populations induites par la première sonde, ou de manière équivalente par la sonde unique de la situation (I) (Eq. (A.III.3-4)), et $\sigma_I^{(1)}$ correspond à l'effet de la deuxième sonde sur le milieu. Compte tenu des caractéristiques des deux sondes, ces deux quantités sont reliées par :

$$\sigma_r^{(1)} = I \sigma_I^{(1)} I^\dagger \quad (\text{A.III.3.1-6})$$

soit d'après (A.III.3.1-4) :

$$\sigma_r^{(1)} = \sum_{n,q,\zeta,\eta} \pi_{n,q,\zeta,\eta}^{(1)} I |n,q,\zeta,\eta\rangle \langle n,q,\zeta,\eta| I^\dagger \quad (\text{A.III.3.1-7})$$

Notre but étant de relier σ_{II} (Eq. (A.III.3.1-5)) à σ_I (Eq. (A.III.3.1-3)), il nous faut donc comparer les matrices densité $\sigma_r^{(1)}$ et $\sigma_I^{(1)}$. Nous distinguerons à nouveau pour cela le cas de la transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, et celui des transitions de moment cinétique entier.

3.2. Cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$

D'après (A.III.2.2-4), nous savons que l'opérateur I transforme à un facteur de phase près l'état $|n,q,\mu\rangle$ en $|n,-q,\mu\rangle$. On peut donc réexprimer $\sigma_r^{(1)}$ sous la forme :

$$\sigma_r^{(1)} = \sum_{n,q,\mu} \pi_{n,-q,\mu}^{(1)} |n,q,\mu\rangle \langle n,q,\mu| \quad (\text{A.III.3.2-1})$$

La comparaison de cette expression avec (A.III.3.1-4) montre que $\sigma_r^{(1)}$ et $\sigma_I^{(1)}$ diffèrent uniquement par les modifications de populations induites par la sonde sur les différents états d'indices de Bloch opposés d'une même bande. Or on s'attend à ce que de tels sous-niveaux dégénérés soient modifiés de façon presque identique par l'onde sonde. Ceci est tout d'abord trivialement exact pour les valeurs particulières $q=0$ et $q=k$ de l'indice de Bloch [Rq.A.III-7]. Nous allons également montrer que c'est une très bonne approximation dans le cas des niveaux de vibration liés les plus bas, qu'il est commode de décrire au moyen de la base des fonctions de Wannier $W_{n,\mu}(z - p\lambda/2)$, translatées de $p\lambda/2$ (avec p entier) de la fonction $W_{n,\mu}(z)$ définie par :

$$W_{n,\mu}(z) = \frac{1}{2k} \int_{-k}^k dq \langle z | n, q, \mu \rangle \quad (\text{A.III.3.2-2})$$

[Rq.A.III-7] Ce sont d'ailleurs uniquement ces valeurs qui ont été retenues dans les calculs numériques présentés au chapitre III.

et localisées au fond du puits de potentiel centré en $z = p\lambda/2$. Les populations des fonctions de Wannier de mêmes indices n et μ étant toutes modifiées de la même façon par l'onde sonde (invariance du système par \mathcal{T}^2 préservée en présence de la sonde), la relation :

$$\langle z|n, q, \mu\rangle = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{\sqrt{2N+1}} \sum_{p=-N}^N e^{iqp\lambda/2} W_{n,\mu}(z - p\lambda/2) \quad (\text{A.III.3.2-3})$$

montre bien que les populations des niveaux $|n, q, \mu\rangle$ et $|n, -q, \mu\rangle$ sont modifiés de façon analogue par l'onde sonde [Rq.A.III-8]. Dans le cas des niveaux de bandes quasi-libres, décrivant en première approximation des atomes d'impulsion bien déterminée (en valeur absolue), et peu sensibles à la modulation spatiale du potentiel optique, il semble également légitime de supposer que les états d'indices de Bloch opposés seront affectés identiquement par la sonde. Ainsi, seuls les états voisins du haut des puits de potentiel peuvent présenter de petites différences dans les modifications de populations des niveaux d'énergie d'indices de Bloch opposés. On peut donc considérer que l'on a en très bonne approximation :

$$\sigma_{\Gamma}^{(1)} \approx \sigma_{\Gamma}^{(1)} \quad (\text{A.III.3.2-4})$$

et par suite :

$$\sigma_{\Gamma} \approx \sigma_{\Pi} \quad (\text{A.III.3.2-5})$$

qui exprime que les modifications de l'état de la mélasse sont en bonne approximation identiques dans les situations expérimentales à une ou deux ondes sondes représentées sur les Figs III.7.2-1 et III.7.3-1. La caractérisation de σ_{Π} à partir des propriétés stationnaires de la mélasse permet donc de déterminer l'influence de l'onde sonde unique sur les populations des différents niveaux de vibration.

3.3. Cas d'une transition atomique de moment cinétique J_g entier

D'après (A.III.2.3-3), nous savons que l'opérateur I transforme à un facteur de phase près l'état $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ en $|n, -q, \eta\zeta, \eta\rangle$, ce qui permet de réexprimer $\sigma_{\Gamma}^{(1)}$ sous la forme :

$$\sigma_{\Gamma}^{(1)} = \sum_{n, q, \zeta, \eta} \pi_{n, -q, \eta\zeta, \eta}^{(1)} |n, q, \zeta, \eta\rangle \langle n, q, \zeta, \eta| \quad (\text{A.III.3.3-1})$$

[Rq.A.III-8] Dans le cas des niveaux de vibration les plus bas, on peut en effet négliger le recouvrement entre les fonctions de Wannier localisées dans deux puits différents.

La comparaison de cette expression avec (A.III.3.1-4) montre que $\sigma_r^{(1)}$ et $\sigma_l^{(1)}$ diffèrent uniquement par les modifications de populations induites par la sonde sur les différents états de même énergie d'une même bande. Comme précédemment, on s'attend à ce que de tels sous-niveaux dégénérés soient modifiés de façon presque identique par l'onde sonde. Nous allons justifier cette approximation dans le cas des niveaux de vibration les plus bas, qui jouent un rôle prépondérant dans les spectres Rayleigh de transmission de l'onde sonde (voir §III.8.2).

Nous suivons une démarche analogue à celle du paragraphe précédent, en cherchant à décrire l'état des niveaux de vibration $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ les plus bas en termes de populations d'états localisés au voisinage du fond d'un puits de potentiel donné, et ayant donc une extension spatiale de l'ordre de $\lambda/4$ [Rq.A.III-9]. On constate tout d'abord que l'approche précédente exploitant l'invariance du Hamiltonien $H_{\text{eff}}^{(0)}$ par \mathcal{T}^2 (translation de $\lambda/2$) ne peut être reconduite ici directement, car les fonctions de Wannier (A.III.3.2-2) ont une extension spatiale de l'ordre de $\lambda/2$, et occupent donc deux puits de potentiel voisins. Nous allons en fait ici exploiter les propriétés de symétrie de $H_{\text{eff}}^{(0)}$ vis-à-vis de la transformation \mathcal{T} , qui décrit l'invariance du potentiel optique par translation de $\lambda/4$, moyennant un changement de l'état atomique interne (voir Eq. (A.III.2.1-3)). Nous remarquons tout d'abord que le groupe de symétrie sous-tendu par \mathcal{T} est isomorphe au groupe des translations spatiales d'un multiple de $\lambda/4$. Ceci conduit à réexprimer l'action (A.III.2.3-1) de l'opérateur \mathcal{T} sur les états $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ comme celle d'un opérateur de translation de $\lambda/4$ sur une base $|n, Q, \eta\rangle$ d'états d'indice de Bloch généralisé Q appartenant à la première zone de Brillouin $-2k < Q \leq 2k$ d'un milieu de périodicité $\lambda/4$:

$$\mathcal{T}|n, Q, \eta\rangle = e^{-iQ\lambda/4}|n, Q, \eta\rangle \quad (\text{A.III.3.3-2})$$

avec la relation univoque :

$$|n, q, \zeta, \eta\rangle = |n, Q = q + (1 - \zeta)k, \eta\rangle \quad (\text{A.III.3.3-3})$$

Il est alors naturel d'étendre la définition (A.III.3.2-2) de l'état de Wannier sous la forme :

$$|W_{n,\eta}\rangle = \frac{1}{4k} \int_{-2k}^{2k} dQ |n, Q, \eta\rangle \quad (\text{A.III.3.3-4})$$

qui possède à présent la propriété d'avoir une extension spatiale de l'ordre de $\lambda/4$. La base naturelle servant à décrire un atome situé au fond d'un puits de potentiel donné est alors engendrée par action successive de l'opérateur \mathcal{T} sur l'état $|W_{n,\eta}\rangle$, conduisant aux états $\mathcal{T}^p |W_{n,\eta}\rangle$ localisés

[Rq.A.III-9] Les puits des potentiels lumineux des transitions atomiques de moment cinétique entier sont en effet distants de $\lambda/4$ (voir §III.8.1).

au fond des puits centrés en $z = p\lambda/4$ (p entier). Les populations des états de Wannier généralisés $\mathcal{T}^p |W_{n,\eta}\rangle$ étant toutes modifiées de façon identique par l'onde sonde (qui conserve l'invariance du système par \mathcal{T}), la relation :

$$|n, Q, \eta\rangle = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{\sqrt{2N+1}} \sum_{p=-N}^N e^{iQp\lambda/4} \mathcal{T}^p |W_{n,\eta}\rangle \quad (\text{A.III.3.3-5})$$

montre comme au paragraphe précédent que les populations des niveaux $|n, Q, \eta\rangle$ d'indices de Bloch généralisés Q différents, et par suite des niveaux $|n, q, \zeta, \eta\rangle$ et $|n, -q, \eta, \zeta, \eta\rangle$, sont modifiées de façon analogue par l'onde sonde.

Les remarques concernant les modifications de population des niveaux plus excités étant identiques à celle faites dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, nous pouvons finalement considérer que les situations à une ou deux ondes sondes décrites par la Fig. III.7.2-1 sont en bonne approximation équivalentes dans le cas des transitions de moment cinétique entier.

A N N E X E B . I I I

**OBSERVABLES IMPLIQUÉES
DANS LA DÉTECTION**

1. Introduction

Nous considérons une mélasse optique 1D linéaire, dans le cas d'une transition atomique quelconque entre un niveau fondamental de moment cinétique $J_g > 1/2$, et un niveau excité de moment cinétique $J_e = J_g + 1$. Comme discuté au §R.5 (Eq. (R.5-6)), le signal de transmission de la sonde à travers le milieu atomique dépend de la façon dont la valeur moyenne d'un certain opérateur \wp , caractéristique de l'interaction de l'onde sonde avec le milieu, est modifiée par la présence de l'onde sonde. Il est donc de grand intérêt de décomposer cet opérateur sous forme d'une combinaison linéaire d'observables possédant une interprétation physique claire, comme la densité (représentée par l'opérateur identité I), l'orientation (décrite par l'opérateur moment cinétique J_z), ou l'alignement (faisant intervenir des produits de deux opérateurs moments cinétiques selon les directions orthogonales à la direction de propagation des faisceaux), afin de dégager une interprétation physique claire de l'origine du signal. C'est ce que nous nous proposons de faire ici.

2. Décomposition de \wp sur la base standard des opérateurs tensoriels irréductibles

Nous cherchons ici à décomposer l'opérateur \wp sur la base standard de l'espace de Liouville des opérateurs tensoriels irréductibles T_q^n ($-n \leq q \leq n$). Cet opérateur s'exprimant en termes de produits deux à deux de composantes d'opérateurs irréductibles d'ordre 1 (moment dipolaire électrique), il ne fait intervenir que les opérateurs irréductibles de rang au plus 2. Nous distinguons les deux cas de polarisation \parallel et \perp de l'onde sonde, associés aux opérateurs \wp_{\parallel} et \wp_{\perp} . Avec le choix de phase, de polarisation, et de direction de propagation des ondes pompes fait au chapitre III, ces deux opérateurs ont l'expression suivante (voir §R.5) :

$$\wp_{\parallel} = (\bar{d}^- \cdot \bar{e}_x)(\bar{d}^+ \cdot \bar{e}_x) - i(\bar{d}^- \cdot \bar{e}_y)(\bar{d}^+ \cdot \bar{e}_y) e^{-2ikz} \quad (\text{B.III.2-1.a})$$

$$\wp_{\perp} = i(\bar{d}^- \cdot \bar{e}_y)(\bar{d}^+ \cdot \bar{e}_x) + (\bar{d}^- \cdot \bar{e}_x)(\bar{d}^+ \cdot \bar{e}_y) e^{-2ikz} \quad (\text{B.III.2-1.b})$$

d'où l'on déduit immédiatement [Omo77] :

$$\wp_{\parallel} = \left[\frac{1}{\sqrt{3}} \mathcal{B}_0 T_0^0 - \frac{1}{2} \mathcal{B}_2 (T_2^2 + T_{-2}^2) + \frac{1}{\sqrt{6}} \mathcal{B}_2 T_0^2 \right] + \left[\frac{1}{\sqrt{2}} \mathcal{B}_1 T_0^1 + \frac{1}{2} \mathcal{B}_2 (T_2^2 - T_{-2}^2) \right] e^{-2ikz} \quad (\text{B.III.2-2.a})$$

$$\wp_{\perp} = \left[\frac{1}{\sqrt{2}} \mathcal{B}_1 T_0^1 - \frac{1}{2} \mathcal{B}_2 (T_2^2 - T_{-2}^2) \right] + \left[\frac{1}{\sqrt{3}} \mathcal{B}_0 T_0^0 + \frac{1}{2} \mathcal{B}_2 (T_2^2 + T_{-2}^2) + \frac{1}{\sqrt{6}} \mathcal{B}_2 T_0^2 \right] e^{-2ikz} \quad (\text{B.III.2-2.b})$$

avec :

$$\mathcal{B}_q = (-1)^{2J_g+q} (2J_g+3) \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & q \\ J_g & J_g & J_g+1 \end{matrix} \right\}_{6j} \quad (\text{B.III.2-3})$$

3. Expression de \wp en fonction d'observables ayant une signification physique simple

Pour les interprétations physiques, il est plus commode de réexprimer les opérateurs tensoriels irréductibles intervenant dans les expressions (B.III.2-2) en fonction de l'opérateur identité I et des composantes de l'opérateur moment cinétique. On utilise pour cela les relations [Omo77] :

$$T_0^0 = \frac{1}{\sqrt{2J_g+1}} I \quad (\text{B.III.3-1})$$

$$T_0^1 = \sqrt{\frac{3}{J_g(J_g+1)(2J_g+1)}} J_z / \hbar \quad (\text{B.III.3-2})$$

$$T_{\pm 2}^2 = \sqrt{\frac{30(2J_g-2)!}{(2J_g+3)!}} J_{\pm}^2 / \hbar^2 \quad (\text{B.III.3-3})$$

$$T_0^2 = \sqrt{\frac{20(2J_g-2)!}{(2J_g+3)!}} \left[3J_z^2 / \hbar^2 - J_g(J_g+1) \right] \quad (\text{B.III.3-4})$$

et les coefficient 6-j :

$$\left\{ \begin{array}{ccc} 1 & 1 & 0 \\ J_g & J_g & J_g + 1 \end{array} \right\}_{6j} = \frac{(-1)^{2J_g}}{\sqrt{3(2J_g + 1)}} \quad (\text{B.III.3-5})$$

$$\left\{ \begin{array}{ccc} 1 & 1 & 1 \\ J_g & J_g & J_g + 1 \end{array} \right\}_{6j} = \frac{(-1)^{2J_g} \sqrt{J_g}}{\sqrt{6(2J_g + 1)(J_g + 1)}} \quad (\text{B.III.3-6})$$

$$\left\{ \begin{array}{ccc} 1 & 1 & 1 \\ J_g & J_g & J_g + 1 \end{array} \right\}_{6j} = \frac{(-1)^{2J_g} \sqrt{J_g(2J_g - 1)}}{\sqrt{30(2J_g + 3)(2J_g + 1)(J_g + 1)}} \quad (\text{B.III.3-7})$$

qui conduisent alors à :

$$\varphi_{//} = \frac{\left[(J_g + 1)^2 I - J_x^2 / \hbar^2 \right] - \left[(2J_g + 3) J_z / 2\hbar - i \{ J_x J_y + J_y J_x \} / 2\hbar^2 \right] e^{-2ikZ}}{(J_g + 1)(2J_g + 1)} \quad (\text{B.III.3-8.a})$$

$$\varphi_{\perp} = \frac{-\left[(2J_g + 3) J_z / 2\hbar + i \{ J_x J_y + J_y J_x \} / 2\hbar^2 \right] + \left[(J_g + 1)^2 I - J_y^2 / \hbar^2 \right] e^{-2ikZ}}{(J_g + 1)(2J_g + 1)} \quad (\text{B.III.3-8.b})$$

Dans ces expressions, les termes modulés spatialement en e^{-2ikZ} sont associés à un processus de diffraction vers l'arrière des ondes pompes. L'opérateur identité I décrit la diffraction sans changement de polarisation des ondes pompes sur la modulation de densité atomique induite par la sonde. L'opérateur moment cinétique J_z correspond au processus de rotation de polarisation des ondes pompes (rotation Faraday) lors de leur diffraction sur le réseau d'orientation modulé temporellement par la sonde. Les termes faisant intervenir le carré d'un opérateur moment cinétique décrivent l'effet sur le champ pompe de la modification d'indice du milieu le long de la direction de polarisation de la sonde. Enfin, les termes d'alignement, proportionnels à $(J_x J_y + J_y J_x)$, rendent compte de l'effet sur les pompes de la biréfringence du milieu induite par l'onde sonde.

**DYNAMICS AND SPATIAL ORDER
OF COLD CESIUM ATOMS IN A
PERIODIC OPTICAL POTENTIAL
(Réf. [Ver92])**

Etude expérimentale du spectre de transmission d'une sonde à travers une mélasse linéaire unidimensionnelle d'atomes de césium. L'observation de résonances Raman ayant une largeur significativement plus faible que le taux de pompage optique (effet Lamb-Dicke) met en évidence la forte localisation des atomes au fond des puits de potentiel associé aux déplacements lumineux. La position de ces résonances donne accès à la fréquence d'oscillation des atomes au fond de ces puits. Une structure Rayleigh stimulée, très sensible au choix de polarisation de la sonde, est également observée au centre des spectres. Elle fournit des informations concernant la *dynamique* des atomes dans le potentiel optique, et sur l'*ordre spatial anti-ferromagnétique* des atomes dans la mélasse. L'interprétation théorique de ces résultats expérimentaux a fait l'objet d'un article théorique (Annexe E.III).

Dynamics and Spatial Order of Cold Cesium Atoms in a Periodic Optical Potential

P. Verkerk, B. Lounis, C. Salomon, and C. Cohen-Tannoudji

Collège de France et Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'École Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, F-75231 Paris, CEDEX 05, France

J.-Y. Courtois and G. Grynberg

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'École Normale Supérieure, Université Pierre et Marie Curie, F-75252 Paris, CEDEX 05, France

(Received 23 March 1992)

The spatial distribution and the dynamics of Cs atoms in a 1D optical molasses are probed by measuring the absorption (or amplification) spectrum of a weak laser beam. Narrow (35–50 kHz) Raman lines give access for the first time to the frequency and to the damping of the atom's oscillation in the potential wells associated with light shifts. A narrower (8 kHz) Rayleigh resonance demonstrates the existence of a large-scale spatial order of the atoms, presenting some analogy with an antiferromagnetic medium.

PACS numbers: 32.80.Pj, 42.65.-k

Laser cooling is a very active subject in atomic physics [1]. Atoms confined in optical molasses have been cooled to microkelvin temperatures [2], providing an important test of the proposed polarization-gradient cooling mechanisms [3]. Theoretically, two 1D laser configurations have been studied in detail, the $\sigma^+ - \sigma^-$ and $\text{lin} \perp \text{lin}$ configurations, where the two counterpropagating laser beams have, respectively, orthogonal circular and linear polarizations [3]. A full quantum treatment has been also performed for the $\text{lin} \perp \text{lin}$ configuration, which predicts that the periodic character of the potentials associated with light shifts leads to vibrational levels for the atomic center of mass exhibiting a band structure [4]. The present Letter reports novel experiments using stimulated Raman and Rayleigh spectroscopy for probing the position distribution of the atoms in the light field and the dynamics of their motion. We measure for the first time the oscillation frequency of the atoms in the light potential. From the width of the Raman lines, we deduce the damping time of this oscillation, which exhibits a dramatic lengthening due to the spatial confinement of atoms to a fraction of optical wavelength (Lamb-Dicke effect) [5]. Furthermore, we get stimulated Rayleigh signals which give experimental evidence for a large-scale spatial order of the atomic gas presenting some analogy with an antiferromagnetic medium.

Contrary to previous work investigating Raman transitions for atoms in a 3D magneto-optical trap [6,7], we restrict ourselves to a 1D optical molasses of adjustable polarization state. This molasses is obtained as follows: Cesium atoms are cooled and trapped by three pairs of $\sigma^+ - \sigma^-$ counterpropagating beams in a magneto-optical trap. After this loading and cooling phase the inhomogeneous magnetic field is switched off and the intensity of each trapping beam is reduced from 5 mW/cm² to about 0.1 mW/cm². A pump wave of frequency ω made of two counterpropagating beams having $\sigma^+ - \sigma^-$ or linear crossed polarizations ($\text{lin} \perp \text{lin}$) is then switched on. A 1D molasses is achieved in a transient way (the atomic densi-

ty decreases with a time constant of 5–50 ms because of the transverse heating induced by the pump beams). We monitor the transmitted intensity of a weak traveling probe wave of frequency ω_p making a 3° angle with the pump wave. All laser beams are derived from a frequency-stabilized diode laser (jitter < 1 MHz) and are independently tuned to the red side of the $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 6P_{3/2}(F'=5)$ transition. Typical intensities for the pump and probe beams are, respectively, $I = 5$ mW/cm² and $I_p = 0.1$ mW/cm². We show in Fig. 1 the probe absorption spectrum versus ω_p for two different configurations of polarization of the pump beams. In Fig. 1(a), these beams are in the $\sigma^+ - \sigma^-$ configuration whereas in Figs. 1(b) and 1(c) they have linear orthogonal polarizations. Figure 1(b) corresponds to the probe polarization orthogonal to that of the pump wave which propagates in the same direction; in Fig. 1(c), it is parallel. The difference between Figs. 1(a) and 1(b), 1(c) is striking. While the absorption varies smoothly over a range of about 500 kHz in the $\sigma^+ - \sigma^-$ case, much sharper structures are observed in the $\text{lin} \perp \text{lin}$ case. First, one observes two narrow resonances [width ~ 35 kHz in Fig. 1(b) and ~ 50 kHz in Fig. 1(c)] symmetrically located with respect to $\omega_p = \omega$ and corresponding to extra absorption for $\omega_p - \omega > 0$ and to gain for $\omega_p - \omega < 0$. For a pump detuning of $\delta = -10$ MHz, the position Ω_p of the maximum of these lateral resonances varies as $I^{0.4}$. Second, spectra shown in Figs. 1(b) and 1(c) exhibit a very steep central structure which depends on the orientation of the probe polarization. The narrowest resonance [Fig. 1(c)] appears to be dispersive with a peak-to-peak separation of 8 kHz [8].

We interpret these resonances as follows. In the $\sigma^+ - \sigma^-$ case, the ground-state light shifts do not depend on space, and there are no bound states in the optical potential. Furthermore, as shown in a preceding paper [6], the transmission probe spectrum involves on one hand Raman transitions between Zeeman sublevels which are populated differently and light shifted and on the other hand

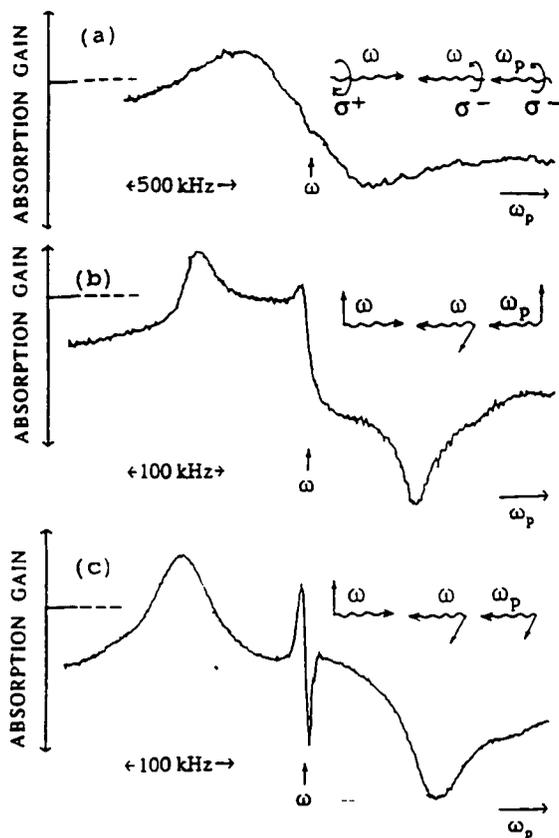


FIG. 1. Probe absorption spectrum for three different polarization configurations. (a) $\sigma^+ - \sigma^-$ polarized pump waves. The signal is 2% of the probe intensity and the shape is insensitive to the probe polarization (experimental frequency resolution of ~ 10 kHz). (b) lin \perp lin polarized pump waves (probe has a linear polarization perpendicular to the polarization of the copropagating pump wave). (c) Same as (b) but with a probe polarization parallel to the one of the copropagating pump wave. In (b) and (c), the frequency resolution is ~ 3 kHz and signals are typically 10% of the probe intensity. Note the difference of scales on the frequency axis between (a) and (b),(c).

two-wave mixing resonances [9,10]. The width of the resonances in Fig. 1(a) is on the order of the optical pumping rate (typically 0.5 MHz in our experimental conditions), which varies linearly with the laser intensity as does the peak-to-peak distance of Fig. 1(a).

In the case of crossed linear polarizations, the light shifts display a periodic spatial modulation (period $\lambda/2$). To interpret the results, we consider the simple case of a $F = \frac{1}{2} \rightarrow F' = \frac{3}{2}$ transition [4]. Each Zeeman sublevel $m_F = \pm \frac{1}{2}$ has a well-defined spatially modulated light shift as depicted in Fig. 2. Near the bottom of the potential wells the atomic medium is alternatively polarized: $\langle J_z \rangle$ changes sign every $\lambda/4$. When the light shifts are sufficiently large, several well-separated bands are predicted in the potential wells associated with the light shifts [4]. The energy separation $\hbar \Omega_\sigma$ between two consecutive bands near the bottom of the potential is propor-

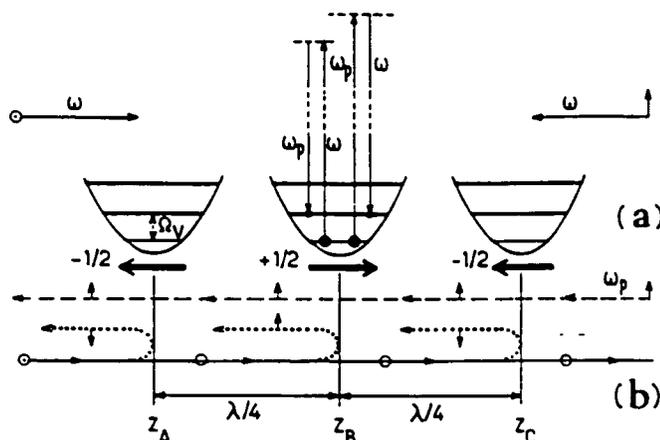


FIG. 2. (a) Bottom part of three adjacent optical potential wells for a $F = \frac{1}{2} \rightarrow F' = \frac{3}{2}$ transition in a lin \perp lin pump configuration. These potential wells are alternatively associated with ground-state sublevels $m_J = -\frac{1}{2}$ and $m_J = \frac{1}{2}$ as shown in the figure. The magnetizations in successive planes have opposite signs as in an antiferromagnetic medium. The vertical arrows represent Raman processes between $v=0$ and $v=1$ vibrational levels, leading to an absorption or an amplification of the probe beam. More generally, all transitions $v \rightarrow v \pm 1$ contribute to the Raman lines shown in Figs. 1(b) and 1(c) in a way which depends on the probe polarization. This explains the difference in the widths of the Raman resonances. (b) Interpretation of the central narrow structure for the configuration of Fig. 1(c). The pump beam coming from the left (solid line) is backscattered by the magnetization planes in z_A , z_B , and z_C . The backscattered waves (dotted lines) undergo a rotation of polarization and can interfere with the probe wave coming from the right (dashed line). The change of sign of the rotation of polarization due to the change of sign of the magnetization (represented by a bold arrow) compensates for the π phase shift due to propagation between successive planes.

tional to the Rabi frequency, i.e., to \sqrt{I} . We thus interpret the lateral resonances of Figs. 1(b) and 1(c) in terms of Raman transitions between adjacent bands as illustrated in Fig. 2. The slight discrepancy between the $I^{1/2}$ law and the experimentally observed $I^{0.4}$ law may result from a weak saturation of the atomic transition. Note that these Raman transitions involve only the atom's external degrees of freedom, within a given m_J manifold. One unexpected feature of these Raman resonances is that their width is almost 1 order of magnitude smaller than the optical pumping rate. This result is very surprising since one would expect the Raman coherence between two bands to be destroyed by an absorption-spontaneous-emission cycle. Actually, a large amount of coherence is preserved during such a cycle because of the spatial localization of atoms. An atom leaving, by absorption, a localized vibrational state with $m_F = \frac{1}{2}$ has a probability close to 1 to return to the same state. First, the probability that m_F changes is very small because the polarization of the laser field is nearly pure σ^+ for a localized $m_F = \frac{1}{2}$ state, and the absorption of a σ^+ photon

brings the atom into $m_F = \frac{1}{2}$ from where it can only return to $m_F = \frac{1}{2}$. Second, the probability that the vibrational quantum number changes is also very small. More precisely, since the transfer of momentum $\hbar\Delta k$ in the scattering process is small compared to the width of the initial wave function in momentum space (because of spatial localization), the atomic state at the end of the scattering process has a very small overlap with the other vibrational wave functions (Lamb-Dicke effect). The damping-rate of the coherence between two vibrational levels is thus considerably reduced because several absorption-spontaneous-emission cycles are required to destroy this coherence [11]. The localization assumption is consistent with the spatial extent $[(2\hbar/M\Omega_p)^{1/2}]$ of the ground-state wave function which is on the order of $\lambda/25$ for $\Omega_p/2\pi = 120$ kHz.

We now sketch a physical interpretation of the narrow central structures of Figs. 1(b) and 1(c), by studying how the probe changes the populations of the vibrational states in each potential well and then, by considering the interference between the probe field and the field scattered from the pump beams, by these probe-induced changes of populations. Consider first the case of Fig. 1(b). In order to qualitatively understand the effect of the probe, we combine the copropagating pump beam with the probe. The resulting field is space independent and has a time-dependent polarization which has alternatively a dominant σ^+ or σ^- component, the period being $2\pi/|\omega - \omega_p|$. When the dominant component is σ^+ polarized, optical pumping redistributes the atomic population between the various vibrational states and results in a global departure from the potential wells associated with $m_F = -\frac{1}{2}$ towards those corresponding to $m_F = +\frac{1}{2}$. This optical pumping gives rise to a net magnetization along Oz (i.e., with a nonzero spatial integral), which is modulated at $|\omega - \omega_p|$ and which is phase shifted with respect to the exciting field because the response times of the populations of the various vibrational levels are nonzero. Consider now the effect of such a modulated magnetization on the pump beam ω copropagating with the probe. The polarization of the pump beam undergoes a modulated Faraday rotation, so that the transmitted pump beam has a small component having the same polarization (and also the same frequency ω_p and direction of propagation) as the probe beam and can thus interfere with it [12]. As shown in [10], the energy transfer from the pump beam to the probe beam or vice versa varies with $\omega_p - \omega$ as a dispersion curve with extrema for $|\omega - \omega_p| \approx 1/\tau$, where τ is the response time of the populations. The interference process considered here involves a forward scattering of the pump wave, so that all population changes in all vibrational levels are probed. Several different response times are thus involved and the central structure results from the superposition of several dispersion curves with different widths, which explains its uncommon shape.

We consider now the case of Fig. 1(c). As above, we combine the copropagating pump beam with the probe. The resulting field has then a fixed linear polarization but its intensity is modulated. When this intensity is maximum, the resulting field adds everywhere an equal amount of σ^+ and σ^- light. The transfers due to optical pumping between the potential wells associated with $m_F = \pm \frac{1}{2}$ balance each other and no net magnetization appears in the sample. The only effect of the probe is to change the population of each vibrational state, the total population in each potential well remaining the same. These population changes are modulated at $|\omega - \omega_p|$ and phase shifted with respect to the exciting field. We now analyze the effect on the pump beams of the population redistribution between the vibrational levels. We have represented in Fig. 2 three successive potential wells corresponding to $m_F = -\frac{1}{2}$, $m_F = +\frac{1}{2}$, and $m_F = -\frac{1}{2}$, located, respectively, at z_A , z_B , and z_C with $z_B - z_A = z_C - z_B = \lambda/4$. The pump beam coming from the left is backscattered by the magnetization associated with the atoms occupying the potential well in $z = z_A$. The backscattered wave undergoes a change of polarization and a change of frequency, so that it has a component having the same polarization, the same frequency, and the same direction of propagation as the probe beam coming from the right. We now show that the waves backscattered by the magnetization planes in $z = z_A$, $z = z_B, \dots$ interfere constructively. The phase shift due to the propagation between the waves backscattered in z_A and z_B is equal to π , since $z_B - z_A = \lambda/4$. However, the magnetizations in two successive planes $z = z_A$ and $z = z_B$ are opposite (as in an antiferromagnetic medium), so that the rotation of the polarization has an opposite sign in $z = z_A$ and $z = z_B$ (see Fig. 2) and this change of sign compensates for the π phase shift due to propagation. The interference of the total backscattered wave with the probe wave gives rise to a two-wave mixing signal which has a dispersion shape and a width corresponding to the inverse of the response time of the involved vibrational levels. So far, we have considered only magnetization planes. The wave functions of the vibrational levels have actually a certain width δz along Oz . If δz is too large, the waves backscattered by the right part and the left part of the wave function interfere destructively. This shows that the two-wave mixing signal will come predominantly from the localized vibrational levels. The observation of such a signal is thus a direct evidence for a spatial order of the atoms. Since the time required to reach the population equilibrium for these localized levels is very long (because of the Lamb-Dicke effect), one understands why the central structure of Fig. 1(c) is so narrow [13].

Our qualitative interpretations are supported by a calculation of the probe absorption spectrum, based on the formalism of [4]. Theoretical spectra, in reasonable agreement with those of Fig. 1, will be reported in a forthcoming publication. We conclude this Letter by

summarizing the information contained in the spectra of Figs. 1(b) and 1(c). The position of the Raman sidebands gives the oscillation frequency of the atom in the optical potential wells of Fig. 2. The narrow width of these sidebands, in comparison with the width observed when atoms are not localized [Fig. 1(a)], is a clear evidence for a lengthening of the dephasing time of the atom oscillatory motion due to the Lamb-Dicke effect. The very narrow central structure of Fig. 1(c) is due to a backward Bragg diffraction of one of the two pump beams by a large-scale spatially ordered structure consisting of equidistant sets of localized atoms, separated by $\lambda/4$, the magnetizations in two successive sets being opposite, as in an antiferromagnetic medium.

We are grateful to J. Dalibard and Y. Castin for fruitful discussions. Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne is a unité de recherche de l'École Normale Supérieure et de l'Université Pierre et Marie Curie, associée au CNRS. This work has been supported by DRET (No. 89214) and CNES (No. 910414).

- [1] See, for example, *Laser Manipulation of Atoms and Ions*, edited by E. Arimondo and W. D. Phillips, Varenna Summer School, 1991 (North-Holland, Amsterdam, 1992).
- [2] C. Salomon, J. Dalibard, W. D. Phillips, A. Clairon, and S. Guellati, *Europhys. Lett.* **12**, 683 (1990); C. Monroe, W. Swann, H. Robinson, and C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1571 (1990).
- [3] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2023 (1989); P. J. Ungar, D. S. Weiss, E. Riis, and S. Chu, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2058 (1989); C. Cohen-Tannoudji and W. D. Phillips, *Phys. Today* **43**, No. 10, 33 (1990).
- [4] Y. Castin and J. Dalibard, *Europhys. Lett.* **14**, 761 (1991).
- [5] Localization of atoms in wavelength-size potentials has been observed in 3D molasses by C. I. Westbrook, R. N. Watts, C. E. Tanner, S. L. Rolston, W. D. Phillips, P. D.

Lett, and P. L. Gould, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 33 (1990), and by N. P. Bigelow and M. G. Prentiss, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 29 (1990).

- [6] D. Grison, B. Lounis, C. Salomon, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg, *Europhys. Lett.* **15**, 149 (1991).
- [7] J. W. R. Tabosa, G. Chen, Z. Hu, R. B. Lee, and H. J. Kimble, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3245 (1991).
- [8] The widths of these resonances are much narrower than the laser jitter. This is not surprising because they correspond to Raman or Rayleigh processes which involve frequency differences between two sources derived from the same laser. The relative frequency jitter of the two sources has been independently measured to be less than 0.2 kHz.
- [9] G. Grynberg, E. Le Bihan, and M. Pinard, *J. Phys. (Paris)* **47**, 1321 (1986).
- [10] G. Grynberg, M. Vallet, and M. Pinard, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 701 (1990).
- [11] When increasing the pump intensity I , the optical pumping rate increases but the localization becomes more pronounced. This is why the width of the Raman resonances grows with I more slowly than the optical pumping rate, as observed experimentally.
- [12] The fact that the experiment is made with a small angle between the probe and pump beams does not invalidate this explanation. The important point is that the scattering of the pump wave on the induced magnetization creates a wave which does propagate in the probe direction. See [9].
- [13] The previous analysis considered only the scattering of one of the two pump beams by a modulated magnetization. Other scattering processes should also be included to fully describe the central resonances. For example, in the configuration of Fig. 1(b), the $m_F = -\frac{1}{2}$ and $m_F = \frac{1}{2}$ potential wells are alternatively depleted. The back-scattering of the counterpropagating pump beam by such a population grating gives rise to a wave that can interfere with the probe wave and thus yields other two-wave mixing contributions to the central resonance. More generally, for angular momenta in the ground state higher than $\frac{1}{2}$, one should also consider the effect of a modulated alignment.

**QUANTIZED ATOMIC MOTION
IN 1D CESIUM MOLASSES
WITH MAGNETIC FIELD
(Réf. [Lou93a])**

Mise en évidence expérimentale par spectroscopie Raman de la quantification des degrés de liberté externes atomiques dans le potentiel optique d'une mélasse d'atomes de césium, obtenue à partir de deux ondes pompe contre-propageantes de même polarisation circulaire, et d'un champ magnétique statique transverse. La présence de trois "overtones" sur les spectres prouve l'existence d'au moins quatre niveaux de vibration quantifiés dans les puits de potentiel. Les spectres sont très sensibles à la présence d'un champ magnétique longitudinal, qui peut notamment conduire à une inversion de population entre niveaux de vibration.

Quantized Atomic Motion in 1D Cesium Molasses with Magnetic Field.

B. LOUNIS(*), P. VERKERK(**), J.-Y. COURTOIS(**)
C. SALOMON(*) and G. GRYNBERG(**)

(*) *Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure
24 rue Lhomond, F-75231 Paris Cedex 05*

(**) *Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure
Université Pierre et Marie Curie - Case 74, F-75252 Paris Cedex 05*

(received 6 August 1992; accepted in final form 16 October 1992)

PACS. 32.80P – Optical cooling of atoms; trapping.

PACS. 42.65F – Phase conjugation.

PACS. 42.65C – Stimulated Raman scattering and spectra; CARS; stimulated Brillouin and stimulated Rayleigh scattering and spectra.

Abstract. – We report the observation of quantized energy levels for the motion of cesium atoms in optical molasses consisting of two counterpropagating σ^+ beams and a small transverse magnetic field. The observation of overtones proves the existence of at least four bound states in each optical potential well. The absorption spectrum is dramatically modified when an additional longitudinal magnetic field is applied. In particular, a population inversion between quantized levels is observed.

Two recent papers have shown that the motion of an atom in the polarization gradient of a laser standing wave may be quantized [1,2]. These two experiments were done in a lin \perp lin 1D optical molasses (two counterpropagating beams with orthogonal linear polarizations). For this situation, the laser wave induces a spatial modulation of the light shifts of the ground-state Zeeman sublevels leading to an optical potential for the atomic motion and thus to a discrete set of quantized vibrational levels v in this potential [3]. In the first experimental observations, transitions $\Delta v = 1$ between adjacent vibrational levels were observed either by stimulated [1] or spontaneous [2] Raman transitions. By contrast the overtones, for which $\Delta v \geq 2$, were not clearly distinguishable in those experiments. We report here the results of an experiment performed with another polarization configuration where the light shifts are also spatially modulated. This is the MASE configuration [4-7] (magnetically assisted Sisyphus effect) consisting of two counterpropagating beams having the same σ^+ polarization in the presence of a small transverse magnetic field. We show that quantized vibrational levels are also present in the MASE configuration. The observation of several overtones up to $\Delta v = 3$ demonstrates the existence of at least four bound states in the same potential well.

Our experiment is done by monitoring both the transmission of a weak probe beam and the

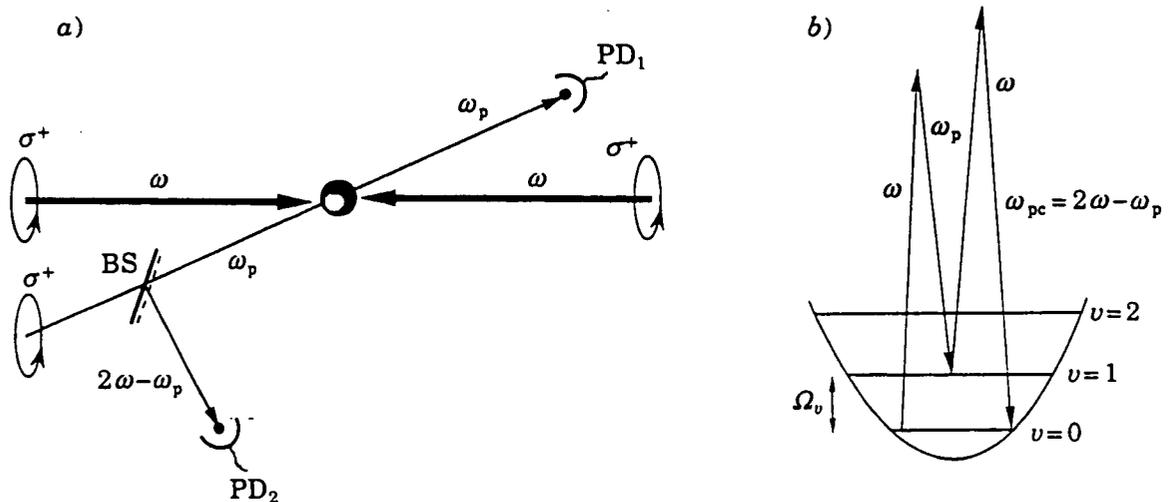


Fig. 1. - a) Experimental set-up. Cold atoms released from a magneto-optical trap are illuminated by a σ^+ -polarized standing wave in the presence of a small transverse magnetic field (B_T) and by a weak σ^+ probe beam. Both the probe transmission and the phase-conjugate signal are recorded simultaneously. The angle between probe and pump beams is 5° and has been exaggerated for clarity in the figure. b) The four-wave mixing process is resonantly enhanced when $\omega_p - \omega$ is equal to the spacing between two vibrational levels in the potential well.

four-wave mixing generation in a phase conjugation geometry [8]. Phase conjugation is indeed a very interesting detection method because it is strongly enhanced when the difference between probe and pump frequencies is equal to an excitation energy of the atom in the optical-potential well. Phase-conjugate reflectivities as large as 2% have been measured on these resonances which demonstrate the very large nonlinearity of this dilute ultra-cold gas at a density of $(10^{11} \div 10^{12})$ atoms/cm³. Such a measurement corresponds to a nonlinear susceptibility of $\sim 2 \cdot 10^{-2}$ e.s.u. which is a very large value in nonlinear optics [9].

The 1D optical molasses is obtained in a transient way by the method described in [1]. About 10^8 cesium atoms are cooled and trapped in a magneto-optical trap. After this loading phase, the inhomogeneous magnetic field is switched off and the intensity of each trapping beam (8 mW/cm^2) is reduced to a very low value ($\sim 0.5\%$ of the initial value). A pump wave of frequency ω made of two counterpropagating σ^+ beams and a travelling σ^+ probe beam of frequency ω_p making a 5° angle with the pump wave are then switched on (fig. 1). All laser beams are derived from a frequency-stabilized diode laser and are independently tuned to the red side of the $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 6P_{3/2}(F'=5)$ transition. Intensities for the pump and probe beams are, respectively, $I = 10 \text{ mW/cm}^2$ and $I_p = 0.1 \text{ mW/cm}^2$ for all experiments reported here. The probe transmission is detected by photodiode PD₁ and the four-wave mixing phase-conjugate signal generated in the direction opposite to the probe beam is detected by photodiode PD₂ (fig. 1a)). The reflected beam originates from a four-wave mixing process where two photons of frequency ω are absorbed in the pump wave, one photon is emitted in the probe wave (ω_p) and another one in the conjugate wave (fig. 1b)). Such a four-wave mixing process is resonantly enhanced when $\omega_p - \omega$ coincides with a Bohr frequency associated with two vibrational energy levels in the same potential well. The intensity of the phase-conjugate emission *vs.* ω_p gives thus access to the energy spectrum of the potential. In these experiments the standing wave of frequency ω plays several roles: first, it induces the spatially modulated light shifts which give rise to the optical potential in which the atomic

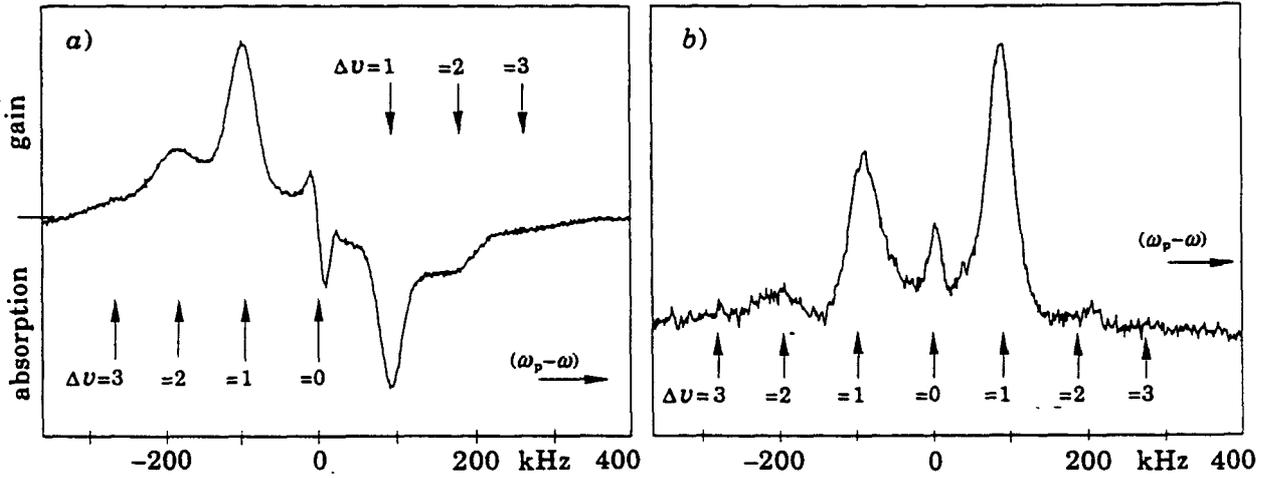


Fig. 2. - a) Probe transmission vs. $\omega_p - \omega$ for a pump detuning $\Delta = -9\Gamma$ and a transverse field $B_T = 0.04$ G. Stimulated Raman transitions with $\Delta v = 1, 2, 3$ appear, indicating the existence of at least four bound states in the same potential well. The central narrow (17 kHz) line is a Rayleigh resonance which is a signature of a large-scale spatial order and long T_1 relaxation times in the atomic medium. b) Corresponding phase conjugation intensity.

motion is quantized; second, it provides through optical pumping the damping mechanism for the atomic velocity; finally, it gives pump photons for the four-wave mixing process.

In fig. 2 we show simultaneous recordings of the probe transmission (fig. 2a) and of the phase-conjugate reflectivity (fig. 2b) vs. $\omega_p - \omega$, for a detuning from resonance $\Delta = -9\Gamma$ ($\Gamma/2\pi = 5.3$ MHz), a resonance Rabi frequency of 2Γ and a transverse magnetic field $B_T = 0.04$ G. Several resonances appear in these spectra. The lateral resonances of fig. 2a) are symmetrically located around $\omega_p = \omega$ and correspond to probe amplification for $(\omega_p - \omega) < 0$ and absorption for $(\omega_p - \omega) > 0$. As in [1], we attribute these resonances to stimulated Raman transitions between vibrational states of the atom in the most light-shifted Zeeman sublevel ($m_F = +4$). The distance between the two $\Delta v = 1$ sidebands is simply twice the vibration frequency Ω_v and it varies as $(I/\Delta)^{1/2}$. The width of these sidebands (~ 35 kHz) is nearly one order of magnitude smaller than the optical-pumping rate. As shown in [1, 10], this surprising result is due to a dramatic lengthening of the relaxation times of the populations and coherences of the lowest-lying states because of the confinement on a scale much smaller than λ . The overtones $\Delta v = 2$ are clearly visible and even $\Delta v = 3$ may be distinguished. Their position at $2\Omega_v$ and $3\Omega_v$ indicates that the bottom of the wells has no significant anharmonicity. One may wonder why overtones are easier to observe in the MASE situation than in the lin \perp lin molasses. A first reason is that the MASE experiment is achievable at a larger detuning where the widths of the resonances are expected to be narrower, while keeping a significant value for the oscillation frequency. A second reason is that in the lin \perp lin molasses, all the parameters relative to eigenlevels and eigenstates (position, matrix elements, relative population, etc.) depend on only one parameter $E_R/\hbar\Delta'$ (where E_R is the recoil energy and Δ' is the light shift) [3]. In particular, the relative intensity of the overtones $I(\Delta v = 2)/I(\Delta v = 1)$ is predicted to be an increasing function of $E_R/\hbar\Delta'$ [10]. Indeed, we have observed the overtone $\Delta v = 2$ in the lin \perp lin situation by decreasing the intensity or increasing the detuning, but the range that we can explore is limited because, in these conditions, the signal decreases rapidly and becomes hardly distinguishable from the central resonance. By contrast, in the MASE situation, there are two independent parameters $E_R/\hbar\Delta'$ and $E_R/\hbar\Omega_T$ (where Ω_T is the Larmor frequency associated with the

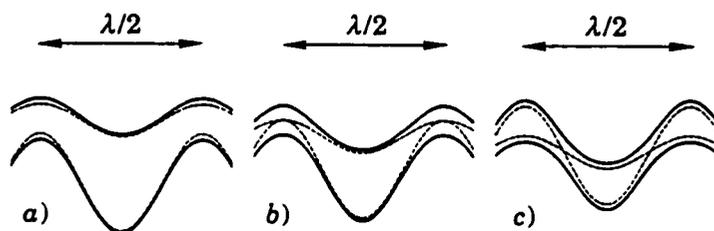


Fig. 3. - Effect of a longitudinal magnetic field on the ground-state optical potentials of a $J = 1/2 \rightarrow J' = 3/2$ system in the MASE configuration. $E_R/\hbar\Delta' = 0.01$, $E_R/\hbar\Omega_T = 0.03$. $E_R/\hbar\Omega_L$ associated with the longitudinal magnetic field is: a) -0.03 , b) 0.0 , c) $+0.03$. The dashed lines represent the optical potentials in the absence of transverse magnetic field.

transverse magnetic field). One can thus adjust the two parameters to optimize the intensities of the overtones. Another interesting feature of these spectra is the very narrow Rayleigh resonance which, by analogy with [1,10], can be attributed to a backward scattering of one pump beam on the periodic modulation of the atomic density induced by the probe beam. This resonance is a signature of a large-scale spatial order in the atomic sample.

In another series of experiments, we have qualitatively studied the modification of the preceding spectra when a longitudinal magnetic field B_L is applied to the molasses. A very different behaviour is expected according to the sign of B_L . We have plotted in fig. 3 the new optical potentials resulting from the light shifts and the magnetic interaction for a $J = 1/2 \rightarrow J' = 3/2$ transition. In fig. 3b), $B_L = 0$ while two opposite values have been taken for fig. 3a) and c). From fig. 3a), it can be seen that the longitudinal magnetic field tends to move apart the optical potentials, while in fig. 3c) the anticrossings between the potentials are shifted towards the bottom of the lowest optical potential. These anticrossings are expected to strongly perturb the position and the populations of the vibrational levels in the potential wells and this will lead to completely different spectra for the probe transmission. This is actually what is observed experimentally as shown in fig. 4 where recordings obtained for $\Delta = -9\Gamma$, $B_T = 0.05$ G and $B_L = \pm 0.30$ G are presented. In the curve shown in fig. 4a) (corresponding to fig. 3c)), one even observes an inversion of the sign of the sideband resonances on the probe transmission. Because these resonances are associated with

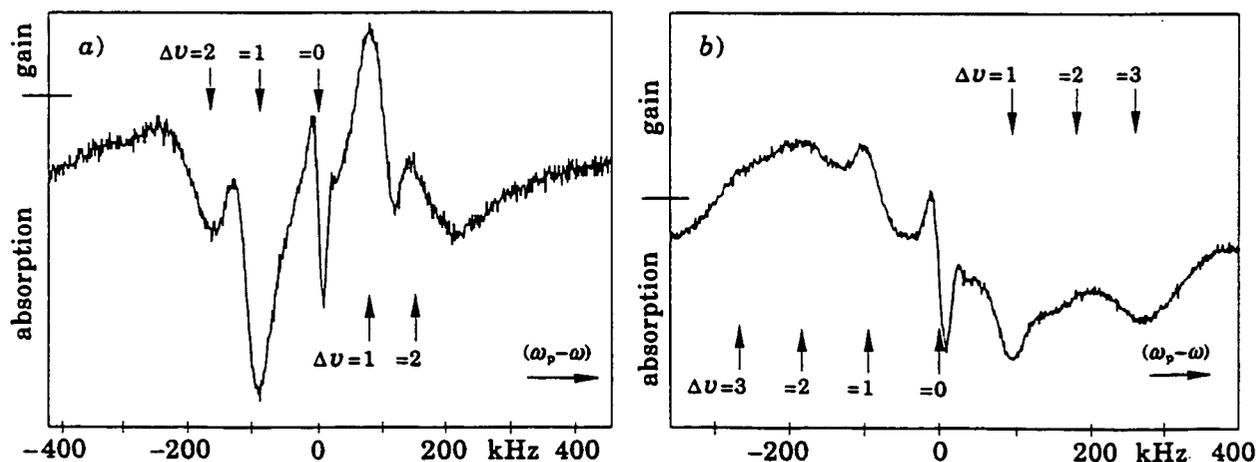


Fig. 4. - Probe transmission for a pump detuning $\Delta = -9\Gamma$, a transverse field $B_T = 0.05$ G and a longitudinal field $B_L = +0.30$ Gauss (a) and -0.30 G (b). Note the sign reversal of the stimulated Raman lines indicating a population inversion in the vibrational levels. The arrows point to the position of the Raman resonances expected for a harmonic potential.

stimulated Raman transitions, one can infer from this recording that there exists a dynamical population inversion between vibrational levels. By contrast, in the curve shown in fig. 4b) (which corresponds to fig. 3a)), a less dramatic behaviour is observed. In fact, when the magnetic field increases the gap between the two potentials, the cooling mechanism becomes less efficient. This leads to a reduction of the intensity of the $\Delta v = 1$ transitions and to a modification of the relative weights of the various transitions⁽¹⁾.

One interesting feature of the preceding experiments is the enhancement of the phase-conjugate reflectivity observed when the resonance condition between bound vibrational levels in a potential well is achieved. Such a behaviour appears to be closely related to the enhancement of nonlinear susceptibilities obtained in semiconductor quantum wells. In fact, the Sisyphus 1D optical molasses may be viewed as an atomic multiple quantum well structure. To illustrate the interest of this sample of ultra-cold atoms for nonlinear optics, we have measured the phase-conjugate reflection coefficient $R_C = (k\chi_{NL}IL)^2$ (k is the wave vector, $L \approx 1$ mm is the optical length of the molasses) to estimate the nonlinear susceptibility χ_{NL} . The maximum values of R_C in the preceding experimental conditions is $R_C = 2 \cdot 10^{-2}$ which corresponds to $\chi_{NL} \sim 3 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{V}^2$ or $2 \cdot 10^{-2}$ e.s.u. The large value of R_C makes this method particularly attractive for the study of other situations. In particular, the next step will probably be the investigation of 2D and 3D optical molasses where, by analogy with quantum wires or quantum dots, an even stronger enhancement of the nonlinear susceptibility due to a higher-dimensional confinement might be obtained.

* * *

Laboratoire de Spectroscopie Hertziennne is a Unité de Recherche de l'École Normale Supérieure et de l'Université Pierre et Marie Curie, associée au CNRS. Work supported in part by Collège de France and DRET (contract no. 89214).

⁽¹⁾ One can also observe in fig. 4a) and b) a background which may be due to recoil-induced resonance, *i.e.* Raman resonances between states of the continuum having different momenta. See [11].

REFERENCES

- [1] VERKERK P., LOUNIS B., SALOMON C., COHEN-TANNOUJDI C., COURTOIS J.-Y. and GRYNBERG G., *Phys. Rev. Lett.*, 68 (1992) 3861.
- [2] JESSEN P., GERZ C., LETT P., PHILLIPS W., ROLSTON S., SPREEUW R. and WESTBROOK C., *Phys. Rev. Lett.*, 69 (1992) 49.
- [3] CASTIN Y. and DALIBARD J., *Europhys. Lett.*, 14 (1991) 761.
- [4] SHEEVY B., SHANG S., VAN DER STRATEN P., HATAMIAN S. and METCALF H., *Phys. Rev. Lett.*, 64 (1990) 858.
- [5] GUPTA R., PADUA S., XIE C., BATELAAN H., BERGEMAN T. and METCALF H., *Bull. Am. Phys. Soc.*, 37 (1992) 1139.
- [6] VALENTIN C., GAGNÉ M.-C., YU J. and PILLET P., *Europhys. Lett.*, 17 (1992) 133.
- [7] EMILE O., KAISER R., GERZ C., WALLIS H., ASPECT A. and COHEN-TANNOUJDI C., to be published.
- [8] BOYD R. W. and GRYNBERG G., *Optical phase conjugation*, in *Contemporary Non Linear Optics*, edited by G. P. AGRAWAL and R. W. BOYD (Academic Press) 1992 and references therein.
- [9] BOYD R. W., *Nonlinear Optics* (Academic Press) 1992, p. 163.
- [10] COURTOIS J.-Y. and GRYNBERG G., *Phys. Rev. A*, accepted for publication.
- [11] GUO J., BERMAN P. R., DUBETSKY B. and GRYNBERG G., *Phys. Rev. A*, 46 (1992) 1426.

**PROBE TRANSMISSION IN
1D OPTICAL MOLASSES.
THEORY FOR LINEARLY CROSS-
POLARIZED COOLING BEAMS
(Réf. [Cou92])**

Étude théorique détaillée des spectres de transmission et de conjugaison de phase d'une onde sonde interagissant avec une mélasse lin₁lin unidimensionnelle. On considère le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$, et l'on se restreint aux situations pour lesquelles la partie dissipative du couplage atome-laser est négligeable devant la partie hamiltonienne (régime oscillant du refroidissement Sisyphé). On étudie les processus Raman stimulés entre niveaux vibrationnels quantifiés des atomes au fond des puits du potentiel optique périodique associé aux déplacements lumineux, et l'on met en évidence un phénomène d'allongement de la durée de vie des cohérences entre niveaux de vibration lié à la localisation des atomes (effet Lamb-Dicke). Des résonances Rayleigh stimulées très sensibles à la polarisation de la sonde sont également prédites au centre des spectres. Une interprétation de ces structures est donnée en termes de diffraction des ondes de refroidissement sur des réseaux de densité ou de magnétisation modulés temporellement par la sonde, et l'on montre que ces résonances donnent des informations sur les propriétés dynamiques du milieu, ainsi que sur l'ordre spatial anti-ferromagnétique des atomes au fond des puits de potentiel. Des indications sur le traitement de transitions atomiques de moment cinétique plus élevé sont données, et l'on présente un exemple de spectre dans le cas de la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ de l'atome de césium.

Probe transmission in one-dimensional optical molasses: Theory for linearly cross-polarized cooling beams

J.-Y. Courtois and G. Grynberg

*Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'École Normale Supérieure, Université Pierre et Marie Curie,
Case 74, T12-E01, F-75252 Paris CEDEX 05, France*

(Received 15 June 1992)

We present a detailed theoretical investigation of the transmission spectrum of a probe beam interacting with atoms in a one-dimensional optical molasses obtained with linearly cross-polarized counterpropagating pump beams. The study is performed for a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ atomic transition in the limit where the Hamiltonian part of the atom-field coupling is predominant over the relaxation part. We analyze the stimulated Raman transitions occurring between different vibrational levels of the atoms in the periodic potential created by the light shifts, and we show a dramatic lengthening of the damping time of coherences between such levels due to the Lamb-Dicke effect. Very narrow Rayleigh resonances with a shape sensitive to the probe polarization appear for a probe frequency close to the pump frequency. We interpret these resonances in terms of scattering of the pump waves on density and magnetization gratings, and show that they provide important information about the dynamics and localization of atoms at the bottom of the potential wells. Such information should also be accessed by phase-conjugation experiments. Finally, indications on the treatment of other atomic transitions are given.

PACS number(s): 32.80.Pj, 32.70.Jz, 42.65.-k

INTRODUCTION

It is well known from both a theoretical and an experimental point of view that the potential wells created by the light shift may be used to trap atoms. Theoretically, Castin and Dalibard [1] have predicted that in the case where two counterpropagating cooling beams have orthogonal linear polarizations (lin⊥lin polarization) the light shifts experienced by the atomic Zeeman sublevels lead to a periodic potential which gives rise to atom localization on the wavelength scale and to an energy-band structure for the atoms. Experimentally, Westbrook *et al.* have demonstrated the existence of localization in three-dimensional (3D) optical molasses by observing a Dicke narrowing of the fluorescence [2]. More recently, Verkerk *et al.* [3] have studied the probe absorption by a 1D cesium optical molasses made from two counterpropagating linearly cross-polarized beams. They have observed narrow resonances which can be attributed on one hand to Raman transitions between different bands and on the other hand to Rayleigh resonances which provide information about the localization and the dynamics of atoms in the potential wells. One particularly important and surprising feature of these resonances is that their widths are more than one order of magnitude smaller than the optical pumping rate. The aim of this article is to give a detailed description of the position and the shape of the resonances that can be observed on the probe transmission and on the probe phase-conjugate reflection. Our theoretical investigation is based on the band model of [1] and is performed for a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ atomic transition. In Sec. I we first recall the most important features of atoms interacting with two lin⊥lin pump beams (geometry of Sisyphus cooling) which are

essential to understand this paper. We then give a qualitative interpretation of the characteristic evolution times (associated with the width of the resonances) for two limiting cases. We first show that in the limit of strong atom localization a dramatic lengthening of effective lifetimes for some atomic variables occurs because of the Lamb-Dicke effect. Another effect involving highly excited states for the external degrees of freedom takes place in the limit of weak atom localization and leads also to very long damping times for some atomic variables. These effects are at the origin of the very narrow widths observed in the experiment. In Sec. II we turn to a more rigorous analysis and we discuss in detail all the important features of the resonances. We finally give some ideas about the treatment of this problem in the case of other atomic transitions.

Our aim here is to extend the formalism of [1] to the case of pump-probe experiments. Our theoretical description is to first order in the amplitude of the probe field. We are thus in a situation where the linear-response theory can be applied [4]. In such a situation, the probe excites some particular evolution modes of the atom in the 1D optical molasses but does not modify its dynamical characteristics. For example, the widths of the resonances obtained in pump-probe experiments only depend on the dynamics of the atoms in the 1D optical molasses in absence of probe. The various shapes of the transmission spectra obtained for different polarization configurations of the probe arise from the different dynamical evolution modes of an atom in a 1D optical molasses that are excited by the probe in each polarization configuration.

By comparison with earlier theoretical descriptions of pump-probe interaction in cold atomic vapors [5], we do

not assume a particular form for the momentum distribution (this could be achieved through the interaction with a reservoir at temperature T). In contrast, the population distribution in the different Hamiltonian eigenstates arises from the interaction of the atom with the incident fields and is thus a dynamical variable in our approach. Also the choice of molasses polarizations that we study here puts the emphasis on the bound states of the atoms in the optical potential wells while the recoil-induced resonances of [5] are actually associated with Raman transitions between continuum states.

I. ATOMS IN THE PRESENCE OF THE PUMP BEAMS

A. Presentation of the model

We consider the simple case of a 1D optical molasses in the geometry of Sisyphus cooling for an atomic transition between a $J_g = \frac{1}{2}$ ground state and a $J_e = \frac{3}{2}$ excited state [6–8]. The cooling field results from the superposition of two counterpropagating pump waves of wavelength $\lambda = 2\pi/k$, traveling along the $+z$ and $-z$ directions. These waves have the same frequency ω , the same amplitude E_0 , and are polarized along Ox and Oy , respectively. The resulting polarization of light exhibits a spatially periodic gradient of ellipticity: for a convenient choice of phases, it is circularly polarized σ^- at $z=0$, linear at $z=\lambda/8$, circularly polarized σ^+ at $z=\lambda/4$, linear at $z=3\lambda/8$, . . . (Fig. 1).

The effect of the interaction between an atom and this field can be split into two parts [9].

(i) On one hand, the reactive part associated with light shifts results in a sinusoidal periodic potential $U_{\pm}^{(0)}(z)$ depending on the atomic ground-state sublevel $|g, \pm\rangle$ [1]

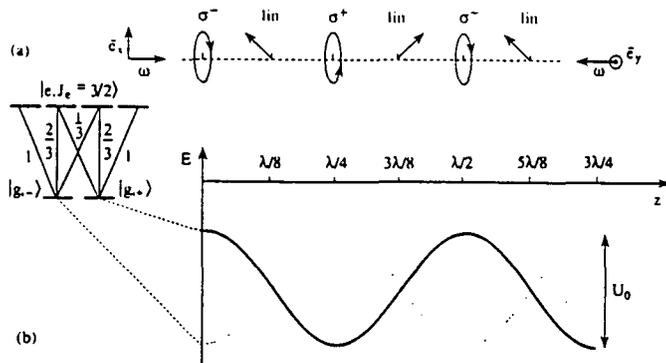


FIG. 1. Polarization gradient in a lin⊥lin 1D optical molasses and associated light-shifted Zeeman sublevels for a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ atomic transition. (a) The cooling wave results from the superposition of two linearly cross-polarized counter-propagating beams having the same intensity and wavelength λ . The resulting polarization exhibits a space-dependent ellipticity. For a convenient choice of phase of the cooling beams, it is σ^- for $z=0$, linear along $(\mathbf{e}_x - \mathbf{e}_y)/\sqrt{2}$ for $z=\lambda/8$, σ^+ for $z=\lambda/4$, linear along $(\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y)/\sqrt{2}$ for $z=3\lambda/8$. (b) The spatial modulation of ellipticity results into a spatially periodic (period $\lambda/2$) modulation of the energies of the light-shifted ground-state Zeeman sublevels.

(Fig. 1):

$$U_{\pm}^{(0)}(z) = \frac{U_0}{2} [-2 \pm \cos(2kz)] , \tag{1}$$

with

$$U_0 = -\frac{2}{3} \hbar \Delta s_0 \tag{2}$$

and

$$s_0 = \frac{\Omega^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} , \tag{3}$$

where $\Omega = -2dE_0/\hbar$ is the resonant Rabi frequency which characterizes the coupling between the atomic dipole d and the field, Γ is the natural width of the atomic excited state, and $\Delta = \omega - \omega_A$ is the detuning between the pump beams (ω) and the atomic (ω_A) frequency (we assume $\Delta < 0$, atomic cooling occurring on the red side of the resonance). This reactive contribution may be characterized by the oscillation frequency Ω_v of the atoms at the bottom of a potential well $U_{\pm}^{(0)}(z)$. For example, near $z=0$ the potential $U_{-}^{(0)}(z)$ can be approximated by $U_{-}^{(h)}(z)$ with

$$U_{-}^{(h)}(z) = -\frac{1}{2}U_0 + U_0 k^2 z^2 \tag{4}$$

and the characteristic oscillation frequency Ω_v is given by

$$\Omega_v = \frac{2U_0}{\hbar} \sqrt{E_R/U_0} , \tag{5}$$

where $E_R = \hbar^2 k^2 / 2M$ is the atomic recoil energy, M being the atomic mass.

(ii) On the other hand, the dissipative part of the atom-field interaction accounts for processes where absorption of a laser photon is followed by spontaneous emission. These processes are in particular responsible for real transitions between $|g, +\rangle$ and $|g, -\rangle$ (optical pumping) which give rise to finite lifetimes of the ground-state sublevels and interrupt the oscillating motion of the atoms in the potential. This contribution is characterized by the optical pumping rate $\gamma_0 = \frac{2}{9} \Gamma s_0$. It should be noticed that γ_0 characterizes the transfer rate between the two Zeeman sublevels. If one wishes to calculate at which rate an atom scatters radiation from the incident field, one should rather use

$$\Gamma' = \Gamma s_0 . \tag{6}$$

The difference between Γ' and γ_0 arises from the fact that an atom can return to its *initial* sublevel through an absorption-spontaneous emission cycle, the multiplicative factor $\frac{2}{9}$ between γ_0 and Γ' ($\gamma_0 = \frac{2}{9} \Gamma'$) being associated with the particular Clebsch-Gordan coefficients of the $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ transition.

Since we want to describe the properties of localized cold atoms, we restrict ourselves to the regime where the reactive part of the atom-field coupling is predominant over the dissipative part

$$\Omega_v \gg \Gamma' \tag{7}$$

and to the low saturation domain

$$s_0 \ll 1, \quad (8)$$

which have been proved to lead to the lowest temperatures [10]. Condition (8) indicates that atoms remain mainly in the internal ground-state sublevels. Condition (7) means classically that an atom oscillates many times at the bottom of the potential before its oscillating motion is interrupted by an absorption-spontaneous emission cycle. For a given depth of the potential U_0 , this condition is fulfilled in the limit of large detunings Δ .

In this regime, all the physical phenomena can be interpreted by means of the eigenstates of the Hamiltonian $H^{(0)}$ associated with the potential $U_{\pm}^{(0)}(z)$:

$$H^{(0)} = \frac{P^2}{2M} + U_{-}^{(0)}(Z)|g, -\rangle\langle g, -| + U_{+}^{(0)}(Z)|g, +\rangle\langle g, +|, \quad (9)$$

where P and Z are the momentum and position operators of the atomic center of mass. This Hamiltonian contains the atomic kinetic energy and the reactive part of the atom-field coupling and is completely characterized by only one dimensionless parameter U_0/E_R . Due to the periodicity ($\lambda/2$) of the potential, the energy spectrum of the atoms displays a band structure similar to the one of electrons in a crystal. Following the Bloch theorem [11], the associated eigenstates can be labeled as $|n, q, \mu\rangle$ where n is a positive integer labeling the band, and where $\mu = \pm$ stands for the internal state $|g, \pm\rangle$. q is the Bloch index which lies within the first Brillouin zone ($-k < q \leq k$) and takes only discrete values when periodic boundary conditions in a box of finite size (an integer number of the potential period $\lambda/2$) are used.

As will be shown in Sec. II, wave functions $|n, q, \mu\rangle$ are very convenient for numerical calculations. However, these completely delocalized eigenstates are not suited to describe atoms of band n localized near the bottom of a given potential well. This situation, well known in the tight binding approximation for electrons in a crystal, can be described by a linear combination of the Bloch functions $|n, q\rangle$ of band n (Wannier function). For sufficiently deep potential wells and for small values of n , the Wannier function roughly corresponds to an eigenstate of the Hamiltonian of an atom in a single well-defined potential well. Such a state should have a spatial extension Δz very small compared to $\lambda/2$. It then corresponds to the intuitive representation of an atom well localized at the bottom of a potential well. In this regime, called Lamb-Dicke regime, the potential $U_{\pm}^{(0)}(z)$ can be approximated near $z=0$ by the harmonic potential given in (4). The Wannier function and the energy of the lowest bands are then approximated by the corresponding wave function and energy of the harmonic oscillator of angular frequency Ω_v . Because the extension Δz of the harmonic oscillator wave function scales as $\sqrt{\hbar/M\Omega_v}$, the small parameter characterizing the Lamb-Dicke regime is

$$k\Delta z \approx \left[\frac{E_R}{U_0} \right]^{1/4} \approx \left[\frac{E_R}{\hbar\Omega_v} \right]^{1/2} \ll 1. \quad (10)$$

The use of Wannier functions instead of Bloch functions is certainly appropriate when the tunneling rate from one well to another is much smaller than the effective lifetime of an atom in a given state caused by absorption-spontaneous emission processes.

As will be shown in the following, a localized atom in a bound vibrational level of the optical potential presents some typical characteristics in the Lamb-Dicke regime when (7) and (8) are fulfilled. The pump-probe transmission spectra reported in [3] display ultranarrow resonances which demonstrate the occurrence of damping rates much smaller than the typical optical pumping rate Γ' . This result is very surprising since one would expect both the populations of the vibrational states and the coherences between different bands to decay with a rate similar to the absorption-spontaneous emission cycles which occur at the rate Γ' . In order to understand the origin of these narrow resonances, we first aim at giving a qualitative interpretation of the typical damping rates of some atomic variables. We distinguish two limiting cases of strong and weak atom localization and we show that a dramatic lengthening of the atomic lifetimes can occur in both situations.

B. Influence of localization on damping rates of populations and coherences: The Lamb-Dicke effect

We show here that in the case of sufficiently deep potential wells, localization of atoms at the bottom of the potential wells is responsible for a spectacular lengthening of the relaxation time of populations and coherences. Let us consider a bound state having an atomic wave function well localized near the bottom of the potential $U_{-}^{(0)}$ where the resulting trapping wave is σ^- polarized and the internal atomic state is $|g, -\rangle$. At this location, the prevailing process undergone by the atom is absorption from the Zeeman sublevel $|g, -\rangle$ to $|e, -\frac{1}{2}\rangle$ from where it can only return to $|g, -\rangle$ (because the Clebsch-Gordan coefficient of the transition is equal to 1). The probability of escaping from $U_{-}^{(0)}$ to a band of $U_{+}^{(0)}$ is small because the transition probability of going from $U_{-}^{(0)}$ to $U_{+}^{(0)}$ depends on the amount of the σ^+ component over the spatial extension of the atomic wave function, which is here very small. Furthermore, the probability of reaching another vibrational band of the potential $U_{-}^{(0)}$ is reduced by the Lamb-Dicke effect, similarly to the case of trapped ions [12]. More precisely, the transfer of momentum ($\approx \hbar k$) in the scattering process is small compared to the width in momentum space of the initial vibrational wave function ($\approx \sqrt{\hbar M \Omega_v}$) because $E_R \ll \hbar \Omega_v$ [see Eq. (10)]. The atomic state at the end of the scattering process has then a very small overlap with the other vibrational wave functions and has a probability close to 1 to coincide with the initial wave function. The damping rate of the populations of the lowest bands is thus considerably reduced because several absorption-spontaneous emission cycles are needed to induce a transfer onto other levels. Similarly, coherences between two vibrational states at the bottom of the potential well are only destroyed after several absorption-spontaneous emission cycles.

In the Lamb-Dicke regime where the wave functions of the lowest bands can be approximated by those of a harmonic oscillator, it is possible to estimate the order of magnitude of these damping rates. We first consider the transition rate from $|g, -\rangle \otimes |\phi_n\rangle$ [where $|\phi_n\rangle$ is the eigenstate of the harmonic oscillator located around $z=0$ and having energy $(n + \frac{1}{2})\hbar\Omega_v$] to any $|g, +\rangle$ state. Because the light polarization e_0 of the pump at a point z is [8]:

$$e_0 = \cos(kz)e_- - i \sin(kz)e_+ \quad (11)$$

(where e_- and e_+ respectively correspond to the σ^- and σ^+ circular polarizations), the average transfer rate from $|g, -\rangle \otimes |\phi_n\rangle$ to the $|g, +\rangle$ states is

$$\Gamma_n^{(1)} = \gamma_0 \langle \phi_n | \sin^2(kZ) | \phi_n \rangle, \quad (12)$$

which involves the average of the σ^+ component of the light over the atomic wave function. For the lowest bound states, we can use $\sin^2(kZ) \approx k^2 Z^2$ which, using the well-known value of $\langle \phi_n | k^2 Z^2 | \phi_n \rangle$ for a harmonic oscillator [$\langle \phi_n | k^2 Z^2 | \phi_n \rangle = (n + \frac{1}{2})\hbar k^2 / M\Omega_v$], yields

$$\Gamma_n^{(1)} = \gamma_0 \left[n + \frac{1}{2} \right] \sqrt{E_R / U_0}. \quad (13)$$

We now consider the transition rate from $|g, -\rangle \otimes |\phi_n\rangle$ to another state $|g, -\rangle \otimes |\phi_m\rangle$ of the same potential well. This transition may be written as

$$\Gamma_{n \rightarrow m} = \Gamma' \left[\overline{|\langle \phi_n | \cos(kZ) e^{ipZ} | \phi_m \rangle|^2} + \frac{1}{3} \overline{|\langle \phi_n | \sin(kZ) e^{ipZ} | \phi_m \rangle|^2} \right], \quad (14)$$

where p is the component of the wave vector of the spontaneously emitted photon along the z axis and the symbol $\overline{(\)}$ describes the average over the direction of emission of the photon. The first term of the right-hand side of (14) corresponds to the absorption of a σ^- photon followed by the emission of a σ^- photon and the second term to a process where two σ^+ photons are involved. The factor $\frac{1}{3}$ in the second term is the square of the Clebsch-Gordan coefficient coupling $|g, -\rangle$ to $|e, +\frac{1}{2}\rangle$.

The transfer rate to any level $n \neq m$ is readily obtained by summing (14) and using the closure relation

$$\Gamma_n^{(2)} = \Gamma' \left[\langle \phi_n | \cos^2(kZ) + \frac{1}{3} \sin^2(kZ) | \phi_n \rangle - \overline{|\langle \phi_n | \cos(kZ) e^{ipZ} | \phi_n \rangle|^2} - \frac{1}{3} \overline{|\langle \phi_n | \sin(kZ) e^{ipZ} | \phi_n \rangle|^2} \right]. \quad (15)$$

To obtain a rough estimate of $\Gamma_n^{(2)}$, we simply assume in this section that the photons are emitted along the z axis (with an equal probability in the $+z$ and $-z$ directions). Expanding $\cos(kZ)$, $\sin(kZ)$, and e^{ikZ} and their products up to order $k^2 Z^2$, Eq. (15) yields

$$\Gamma_n^{(2)} \approx \frac{10}{9} \Gamma' (n + \frac{1}{2}) \sqrt{E_R / U_0}. \quad (16)$$

By summing (13) and (16), one finds that the effective departure rate Γ_n^{eff} from level $|g, -\rangle \otimes |\phi_n\rangle$ is on the order of

$$\Gamma_n^{\text{eff}} \approx \Gamma' (n + \frac{1}{2}) \sqrt{E_R / U_0}. \quad (17)$$

This rate is smaller than the optical pumping rate Γ' by a factor on the order of $\sqrt{E_R / U_0}$ for the lowest bound levels. Experimentally, it is easy to achieve values of U_0 / E_R of the order of 1000. In these conditions, the effective lifetime of the lowest bound states is lengthened by a factor of the order of 30. Because the atom actually scatters photons at a rate Γ' , this means that the dominant process is elastic scattering. For the figures considered above, one can estimate the number of elastic photons in the fluorescence spectrum to be on the order of 95% of the total number of scattered photons for the lowest bound states [13].

Because $\sqrt{U_0 / E_R} = \hbar\Omega_v / 2E_R$, one may rewrite (17) in the following form:

$$\Gamma_n^{\text{eff}} \approx \Gamma' (2n + 1) \frac{E_R}{\hbar\Omega_v}. \quad (18)$$

Finally, using the same method, one can find the effective relaxation rate Γ_{nm}^{eff} for any coherence σ_{nm} between localized states n and m at the bottom of the potential well. The corresponding result is

$$\Gamma_n^{\text{eff}} \approx \Gamma' \left[\frac{n + m + 1}{2} \right] \sqrt{E_R / U_0}, \quad (19)$$

or equivalently

$$\Gamma_{nm}^{\text{eff}} \approx \Gamma' (n + m + 1) \frac{E_R}{\hbar\Omega_v}. \quad (20)$$

The considerable lengthening of the coherence relaxation time is due to an important transfer of coherence during an absorption-spontaneous emission cycle [14]. A semiclassical picture of the lengthening of the coherence relaxation time may also be given. This relaxation time describes how rapidly the phase of the oscillation of the atom in an optical potential well is lost. For an atom oscillating at the bottom of the potential well, the oscillating motion is interrupted by absorption-spontaneous emission cycles. However, the atom essentially returns to the potential well it has left (because the Clebsch-Gordan coefficient connecting $|g, -\rangle$ and $|e, -\frac{1}{2}\rangle$ is equal to 1) with only a small change of momentum. If this change of momentum remains small compared to the average momentum, the atomic motion is only slightly perturbed and it thus takes several absorption-spontaneous emission cycles before the oscillation is interrupted or loses the memory of its initial phase.

In conclusion, the preceding analysis shows that one should expect a considerable lengthening of T_1 and T_2 relaxation times for atoms in bound vibrational levels in the limit of deep potential wells. The lengthening of these relaxation times shows also that the boundary between the "oscillating regime" and the "jumping regime" [10] may sometimes be subtle. For example, it seems reasonable to consider that the system is in the oscillating regime in state $|n\rangle$ if $\Omega_v \gg \Gamma_n^{\text{eff}}$ (the atom oscillates during several periods before it actually leaves the state $|n\rangle$) even if $\Omega_v \ll \Gamma'$ (the experiment of [3] was in fact realized

in this situation). In this case, one has an oscillating regime near the bottom of the potential well and a jumping regime above.

C. Damping rates for atomic variables involving continuum states

We show here that in the limit of shallow optical potentials where the population of the continuum states is not negligible, a lengthening of the relaxation time of populations of a different kind is expected. Our analysis is based on a semiclassical description of the atoms similar to the one of [10] where the atomic system is characterized by a Wigner representation $w_{\pm}(z, p, t)$ of the density matrix reduced to the ground-state Zeeman sublevels $|g, \pm\rangle$. The dynamical properties of the atomic system are then represented by a Fokker-Planck evolution equation for the distributions w_{\pm} . In particular, the eigenvalues of the associated Fokker-Planck operator give access to the damping time constants of the populations. Nonetheless, it is not sufficient to calculate the whole spectrum of the Fokker-Planck operator to have an immediate estimate of the widths of the resonances in the probe transmission spectrum. Indeed, as previously emphasized, only a few number of evolution modes are excited by the probe beam and are of interest in the probe transmission spectra. As will be shown in detail in Sec. II E 4 the probe can excite eigenfunctions of the Fokker-Planck equation which satisfy the equation

$$-\lambda w = D_0 \frac{\partial^2 w}{\partial p^2}, \quad (21)$$

where $D_0 = \frac{11}{18} \hbar^2 k^2 \Gamma' \approx \hbar^2 k^2 \Gamma' / 2$ is the momentum diffusion coefficient, w is the eigenfunction, and $-\lambda$ is the associated real negative eigenvalue. In order to determine the actual form of w , it is necessary to associate Eq. (21) with boundary conditions which take into account the characteristics of the probe interaction. It turns out that the probe excitation exhibits a cutoff in the momentum space for a value p_0 which is independent on the potential depth U_0 , provided that the potential is sufficiently shallow (see Sec. II E 4). This property yields

$$w(p) = \cos(\sqrt{\lambda/D_0} p), \quad (22)$$

with

$$\lambda \approx \frac{\pi^2 D_0}{p_0^2}, \quad (23)$$

where p_0 denotes the typical momentum associated with the typical highest continuum state excited by the probe beam. As shown in Sec. II E 4(a), a typical value is $p_0 \approx 100 \hbar k$. It gives $\lambda \approx 10^{-3} \Gamma'$, which is much less than the Lamb-Dicke estimate (17) applied to the case of shallow optical potentials. It can be noticed from (21) that these very long damping times for the populations are associated with the very slow diffusion-induced relaxation in momentum space of a mode excited by the probe, in a regime where the cooling friction force is inefficient. Note, however, that our theoretical investigation does not take into account the Doppler cooling friction force

(characterized by a friction coefficient α_D). This effect actually constrains the damping rate of the populations to be larger than α_D/M , and thus puts a lower limit on Eq. (23). It may be noticed that this influence of the continuum states on the dynamical properties of atoms in 1D optical molasses occurs in a range of parameters close to the threshold of the sub-Doppler cooling mechanism.

D. Dynamical properties of the atomic medium

As shown in [1], it is possible to write a Bloch equation for the ground-state part σ of the density matrix taking into account both the internal (Zeeman sublevels) and the external (center-of-mass position and momentum) atomic degrees of freedom. It is convenient to write this equation in the form

$$\dot{\sigma} = L \cdot \sigma, \quad (24)$$

where L is an operator acting on the density matrix. This operator describes the interaction between atoms and pump beams and encloses all the dynamical properties of the atomic medium. In particular, the eigenvalues of L represent the damping and evolution rates of populations and coherences. Note, however, that the eigenmodes generally involve a large number of density matrix elements, so that it is not possible to associate a damping rate to a given population or coherence. As will be shown in Sec. II, these eigenmodes and eigenvalues play a key role in the description of all the dynamical properties of the atoms, and are the central point of our theoretical treatment.

II. ATOMS IN THE PRESENCE OF THE PROBE BEAM

A. General

In addition to the cooling pump beams, a weak probe beam of amplitude E_p and frequency $\omega_p = \omega + \delta$ ($|\delta| \ll \omega$) propagating along the $+z$ direction is sent through the atomic medium (Fig. 2). The linear polarization of the probe e_p can be either parallel (along Ox) or orthogonal (along Oy) to the one of the pump beam which propagates in the same direction. In the following, we will refer to these two polarization configurations as the $\mathbf{R} = \parallel$ and \perp configurations. Because we consider a pump-probe experiment, all the quantities which appear in this section will be written to first order in the small parameter:

$$\varepsilon = \frac{E_p}{E_0} \ll 1. \quad (25)$$

We thus study the linear response of the system to the probe. In the experimental situation of Fig. 2, one may have access to several physical signals. We study two of them in the following. The first one is the variation of the probe transmission versus ω_p . The second one corresponds to four-wave mixing optical phase conjugation [15]. This process is associated with absorption of photons from the counterpropagating cooling beams, amplification of the probe and generation of a wave of frequency $2\omega - \omega_p$ propagating in the direction opposite to the direction of the probe. Such a wave can be detect-

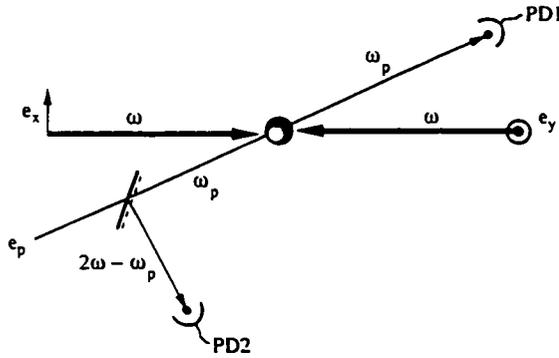


FIG. 2. Schematic experimental setup for pump-probe experiments. In addition to the cooling wave at frequency ω , a weak probe beam having linear polarization e_p and frequency ω_p is sent through the atomic medium (represented by a graduated sphere). By monitoring the probe intensity with photodiode PD1 as a function of the probe frequency, one has access to the probe transmission spectrum. The phase-conjugate reflected beam (frequency $2\omega - \omega_p$) can also be measured by means of photodiode PD2 (and of a plate located on the path followed by the probe beam).

ed by introducing a plate on the path followed by the probe (Fig. 2). Recently, such a signal has been observed in experiments on 1D optical molasses [16].

In the linear regime [4], the characteristics of the system (position of the resonances, damping times, etc.) are only determined by the unperturbed eigensystem of the Bloch equation (i.e., in the absence of a probe). The information that can be obtained from such a situation concerns the dynamics of the 1D optical molasses. More precisely, the direct application of the *linear-response theory* shows that the transmission of the probe beam of frequency ω_p can be calculated from the Fourier component at frequency ω_p of the function $\Theta(\tau)\langle [D_p^-(0), D_p^+(-\tau)] \rangle$. In this expression $\Theta(\tau)$ is the Heaviside function [$\Theta(\tau)=0$ if $\tau < 0$ and $\Theta(\tau)=1$ if $\tau > 0$], $D_p^+ = (d^+ \cdot e_p) e^{ikZ}$ ($d^+ = P_e d P_g$ where P_e and P_g are the projectors onto the excited state and ground state, respectively), $D_p^- = (D_p^+)^{\dagger}$, and $D_p^+(-\tau)$ corresponds to the evolution of D_p^+ between 0 and $-\tau$ in the Heisenberg representation under the effect of the trapping beams and of the radiative relaxation. The average value of the commutator is taken in the steady state of the system in the absence of a probe. Such a result clearly shows that the positions and widths of the resonances observed on the probe transmission depend only on the zeroth-order solution and *the only effect of the probe is to excite some particular dynamical modes of the optical molasses*. The information that can be obtained from probe transmission are thus of the same kind as those obtained by monitoring the fluorescence spectrum [the line shape then depends on the Fourier transform of correlation functions of the type $\langle D_f^+(\tau) D_f^-(0) \rangle$ where f now corresponds to the polarization component and direction of analysis of the fluorescence [17]]. Similarly, the wave generated in the backward direction through phase conjugation has an intensity which depends on the square of the Fourier component of functions like $\Theta(\tau)\langle [D_{PC}^-(0), D_p^+(-\tau)] \rangle$

where the index PC refers to the phase-conjugate polarization and direction [18].

All the experimental techniques considered above (probe transmission, optical phase conjugation, or fluorescence) thus give access to the dynamics of the 1D optical molasses. However, each of these experiments may be sensitive to a different combination of the eigenmodes. For example, the eigenmode associated with the steady state which has an infinite lifetime is only detected through the elastic part of the fluorescence spectrum.

B. Optical Bloch equation for internal and external degrees of freedom

We follow here a procedure similar to the one of [1] for the quantum treatment of Sisyphus cooling, but in addition a probe beam is included. The reactive part of the coupling still consists of a spatially periodic potential $U_{\pm}(\mathbf{R}, z, t)$ depending on the atomic ground-state sublevel $|g, \pm\rangle$, but it now depends on the probe polarization and on time. Condition (8) being fulfilled, one can adiabatically eliminate optical coherences and the excited-state part of the density matrix and obtain an evolution equation for the ground-state part σ of the density matrix, taking into account both the internal (Zeeman sublevels) and the external (center-of-mass position and momentum) degrees of freedom:

$$\dot{\sigma}(t) = \frac{1}{i\hbar} [H(\mathbf{R}, t), \sigma(t)] + \dot{\sigma}(t)_{\text{relax}}, \quad (26)$$

with

$$H(\mathbf{R}, t) = \frac{P^2}{2M} + U_-(\mathbf{R}, Z, t) |g, -\rangle \langle g, -| + U_+(\mathbf{R}, Z, t) |g, +\rangle \langle g, +| \quad (27)$$

and

$$\begin{aligned} \dot{\sigma}(t)_{\text{relax}} = & -\frac{\gamma_0}{2} [A(\mathbf{R}, t)\sigma(t) + \sigma(t)A(\mathbf{R}, t)] \\ & + \gamma_0 \int_{-\hbar k}^{\hbar k} dp \sum_m N_m(p) B_m^{\dagger}(\mathbf{R}, t) e^{-ipZ/\hbar} \sigma(t) \\ & \times e^{ipZ/\hbar} B_m(\mathbf{R}, t), \end{aligned} \quad (28)$$

$$A(\mathbf{R}, t) = A_-(\mathbf{R}, Z, t) |g, -\rangle \langle g, -| + A_+(\mathbf{R}, Z, t) |g, +\rangle \langle g, +|. \quad (29)$$

As in Sec. I the Hamiltonian H contains the atomic kinetic energy and the reactive part of the atom-field coupling. The potentials U_{\pm} differ from the potentials $U_{\pm}^{(0)}$ because of the probe contribution. More precisely, one has

$$U_{\pm}(\mathbf{R}, Z, t) = U_{\pm}^{(0)}(Z) + \varepsilon \{ U_{\pm}^{(1)}(\mathbf{R}, Z) e^{-i\delta t} + [U_{\pm}^{(1)}(\mathbf{R}, Z)]^{\dagger} e^{i\delta t} \}, \quad (30)$$

with

$$U_{\pm}^{(0)}(Z) = \frac{U_0}{2} [-2 \pm \cos(2kZ)], \quad (31a)$$

$$U_{\pm}^{(1)}(\parallel, Z) = \frac{U_0}{4} (-2 \pm e^{2ikZ}), \quad (31b)$$

$$U_{\pm}^{(1)}(\perp, Z) = \frac{U_0}{4} (\pm 1 - 2e^{2ikZ}). \quad (31c)$$

The relaxation term corresponding to the dissipative part of the coupling has two contributions. The first one describes the departure from a given level to the others via an absorption process. The second one accounts for the reverse process of feeding one level by the others through an absorption-spontaneous emission cycle.

In presence of the probe, operators $A_{\pm}(\mathbf{R}, Z, t)$ and $B_m(\mathbf{R}, t)$ take the form

$$A_{\pm}(\mathbf{R}, Z, t) = A_{\pm}^{(0)}(Z) + \varepsilon \{ A_{\pm}^{(1)}(\mathbf{R}, Z) e^{-i\delta t} + [A_{\pm}^{(1)}(\mathbf{R}, Z)]^{\dagger} e^{i\delta t} \}, \quad (32)$$

with

$$A_{\pm}^{(0)}(Z) = \frac{1}{2} [2 \mp \cos(2kZ)], \quad (33a)$$

$$A_{\pm}^{(1)}(\parallel, Z) = \frac{1}{4} (2 \mp e^{2ikZ}), \quad (33b)$$

$$A_{\pm}^{(1)}(\perp, Z) = \frac{1}{4} (\mp 1 + 2e^{2ikZ}), \quad (33c)$$

$$B_m(\mathbf{R}, t) = B_m^{(0)}(Z) + \varepsilon \{ B_m^{(1)}(\mathbf{R}, Z) e^{i\delta t} \}, \quad (34)$$

with

$$B_0^{(0)}(Z) = \cos(kZ) |g, +\rangle \langle g, -| + i \sin(kZ) |g, -\rangle \langle g, +|, \quad (35a)$$

$$B_{\pm}^{(0)}(Z) = \frac{1}{2\sqrt{2}} (e^{ikZ} \mp e^{-ikZ}) \Lambda^{(\pm)}, \quad (35b)$$

$$B_0^{(1)}(\parallel, Z) = \frac{1}{2} e^{-ikZ} [|g, +\rangle \langle g, -| - |g, -\rangle \langle g, +|], \quad (35c)$$

$$B_{\pm}^{(1)}(\parallel, Z) = \mp \frac{1}{2\sqrt{2}} e^{-ikZ} \Lambda^{(\pm)}, \quad (35d)$$

$$B_0^{(1)}(\perp, Z) = \frac{1}{2} e^{-ikZ} [|g, +\rangle \langle g, -| + |g, -\rangle \langle g, +|], \quad (35e)$$

$$B_{\pm}^{(1)}(\perp, Z) = \frac{1}{2\sqrt{2}} e^{-ikZ} \Lambda^{(\pm)}, \quad (35f)$$

where

$$\Lambda^{(q)} = (2-q) |g, -\rangle \langle g, -| + q |g, +\rangle \langle g, +|. \quad (36)$$

The integral is taken over the momentum p along Oz of the spontaneously emitted photon, which only takes discrete values when periodic boundary conditions in a box of finite size are used. Index m represents the projection of the photon angular momentum along Oz and functions $N_m(p)$ stand for the normalized distribution pattern for the spontaneously emitted photon [19],

$$N_{\pm 1}(p) = \frac{3}{8\hbar k} \left[1 + \frac{p^2}{\hbar^2 k^2} \right], \quad (37a)$$

$$N_0(p) = \frac{3}{4\hbar k} \left[1 - \frac{p^2}{\hbar^2 k^2} \right]. \quad (37b)$$

C. Principle of the calculation

1. General

In order to calculate the transmission spectrum of the probe, we solve the Bloch equation (28) using perturbation theory to first order in ε and to zeroth order in γ_0/Ω_p because we assume that (7) is fulfilled. The density matrix we look for is of the form

$$\sigma = \sigma^{(0)} + \varepsilon \{ \sigma^{(1)} e^{-i\delta t} + (\sigma^{(1)})^{\dagger} e^{i\delta t} \}. \quad (38)$$

The first step of the calculation consists in solving equation

$$L \cdot \sigma^{(0)} = 0, \quad (39)$$

with

$$L \cdot \sigma = \frac{1}{i\hbar} [H^{(0)}, \sigma] - \frac{\gamma_0}{2} [A^{(0)}\sigma + \sigma A^{(0)}] + \gamma_0 \int_{-\hbar k}^{\hbar k} dp \sum_m N_m(p) (B_m^{(0)})^{\dagger} e^{-ipZ/\hbar} \sigma e^{ipZ/\hbar} B_m^{(0)} \quad (40)$$

and

$$A^{(0)} = A_-^{(0)} |g, -\rangle \langle g, -| + A_+^{(0)} |g, +\rangle \langle g, +|. \quad (41)$$

To simplify the resolution of the Bloch equation, we use some symmetry properties of $H^{(0)}$ and of its eigenstates $|n, q, \mu\rangle$. The Hamiltonian $H^{(0)}$ is invariant by the symmetry groups represented by the unitary transformation \mathcal{T} and \mathcal{P} :

$$\mathcal{T}|z\rangle \otimes |\mu\rangle = \left| z + \frac{\lambda}{4} \right\rangle \otimes |-\mu\rangle, \quad (42)$$

$$\mathcal{P}|z\rangle \otimes |\mu\rangle = |-z\rangle \otimes |\mu\rangle. \quad (43)$$

It follows that the eigenstates $|n, q, -\rangle$ and $|n, q, +\rangle$ have the same energy $E_{n,q}$ and can be expressed in terms of functions $|n, q\rangle$ which have a well-defined parity:

$$|n, q, -\rangle = |g, -\rangle \otimes |n, q\rangle, \quad (44)$$

$$|n, q, +\rangle = \mathcal{T}|n, q, -\rangle. \quad (45)$$

Finally, we can note that the Bloch index q labels the way functions $|n, q\rangle$ transform by \mathcal{T}^2 :

$$\mathcal{T}^2|n, q\rangle = e^{iq\lambda/2}|n, q\rangle. \quad (46)$$

As shown in [1], when (7) is fulfilled it is possible to prove, using secular approximation, that $\sigma^{(0)}$ is diagonal in the basis $|n, q, \mu\rangle$. In particular every density-matrix element between two states of different Bloch index are zero (due to the invariance of $\sigma^{(0)}$ by \mathcal{T}). It is also possi-

ble to show that the steady-state populations only depend upon the dimensionless parameter U_0/E_R . These properties of the wave functions $|n, q, \mu\rangle$ lead to a considerable simplification of the numerical calculations.

In a second step, taking into account the effect of the probe to first order in ϵ , one obtains an equation of the form

$$(i\delta + L) \cdot \sigma^{(1)} = S(\mathbf{K}). \quad (47)$$

We solve this equation as follows: First, the Bloch operator is diagonalized:

$$L \cdot \sigma_\lambda = -(\gamma_\lambda + i\omega_\lambda) \sigma_\lambda, \quad (48)$$

where σ_λ is an eigenvector of eigenvalue $-\gamma_\lambda - i\omega_\lambda$ (where $\gamma_\lambda \geq 0$ and ω_λ are real). Second, the source term $S(\mathbf{K})$ due to the interaction with the probe is expanded on the basis of the eigenvectors σ_λ :

$$S = \sum_\lambda s_\lambda \sigma_\lambda. \quad (49)$$

The density matrix to first order in ϵ is then given by

$$\sigma^{(1)} = \sum_\lambda \frac{s_\lambda}{-\gamma_\lambda + i(\delta - \omega_\lambda)} \sigma_\lambda. \quad (50)$$

For the numerical calculations, the integrals over the momentum along Oz of the spontaneously emitted photon are substituted for a discrete sum since periodic boundary conditions are used for both the spontaneous emission and the band structure. In the spectra presented in this article, a box of size λ has been used so that bands are described by two Bloch vectors and spontaneous emission is assumed to occur only in the $+z$ and $-z$ directions, as well as in any direction orthogonal to Oz .

2. Case of probe transmission spectra

In order to calculate the probe transmission spectrum, we evaluate the polarization of the medium and calculate the power transfer $P_{\mathbf{K}}$ from the atoms to the probe field, normalized to ϵ , and neglecting linear absorption:

$$P_{\mathbf{K}} = -\frac{1}{\epsilon} \overline{\mathbf{E}_p^3(\mathbf{K})} \cdot \frac{d\mathbf{P}}{dt} = \frac{N\hbar\Omega^2\omega l}{\sqrt{2}(\Delta^2 + \Gamma^2/4)} \text{Im}\{(\Delta - i\Gamma/2) \text{Tr}\{\rho_{\mathbf{K}} \sigma^{(1)}\}\}, \quad (51)$$

where N is the atomic density and l is the length of the atomic medium. $\rho_{\mathbf{K}}$ is an operator that only depends

upon \mathbf{K} , equal to:

$$\rho_{\mathbf{K}} = (d^- \cdot \mathbf{e}_p^*(\mathbf{K})) (d^+ \cdot \mathbf{e}_0(\mathbf{Z})) e^{-ikZ}. \quad (52)$$

\mathbf{e}_p (\mathbf{e}_0) is the polarization of the probe (pump) field, d^+ is the dimensionless exciting part of the dipole operator ($d^+ = P_e d P_g$) and $d^- = (d^+)^\dagger$.

3. Case of phase-conjugate reflection

The phase-conjugation reflection coefficient $R_{\mathbf{K}}$ is calculated in the limit of a thin atomic medium, and is given by

$$R_{\mathbf{K}} = \left| \frac{Nd^2\omega l}{\sqrt{2}\epsilon_0\hbar c(\Delta + i\Gamma/2)} \text{Tr}\{\mathcal{J}_{\mathbf{K}}(\sigma^{(1)})^\dagger\} \right|^2, \quad (53)$$

with

$$\mathcal{J}_{\mathbf{K}} = [d^- \cdot \mathbf{e}_{\text{PC}}^*(\mathbf{K})] [d^+ \cdot \mathbf{e}_0(\mathbf{Z})] e^{ikZ}, \quad (54)$$

where \mathbf{e}_{PC} is the polarization of the phase-conjugate beam, orthogonal to the polarization of the probe beam. Expression (53) clearly shows that the calculation of $R_{\mathbf{K}}$ is very similar to the one of $P_{\mathbf{K}}$ since the phase-conjugate reflectivity and the probe transmission are expressed in terms of the same quantities.

D. Raman transitions

We first investigate the characteristics of the Raman transitions occurring between different bands. We expect that such transitions mainly involve the lowest energy states of the optical potential, because the most important population differences occur for these levels and because most of the atoms occupy these bands in steady state. For these levels, the distance between adjacent band states is approximately constant, of the order of $\hbar\Omega_v$. We can thus estimate that Raman resonances will occur around $\delta = m\Omega_v$ (m integer number). As a consequence, in the limit where (7) is fulfilled and for $\delta \approx m\Omega_v$, a coherence $\langle n, q | \sigma | n+m, q \rangle$ ($m \neq 0$) is mainly coupled to a coherence $\langle n', q' | \sigma | n'+m', q' \rangle$ with $m = m'$ (secular approximation). It is thus possible to analyze independently for each value of $m \neq 0$ the different Raman resonances involving transitions from bands n to bands $n+m$. We then obtain the Raman spectrum with peaks centered around $\delta = m\Omega_v$.

The source term used for the calculation of Raman resonances is

$$\langle n, q, \mu | S | n+m, q, \mu \rangle$$

$$= -\frac{1}{i\hbar} \langle n, q, \mu | U_\mu^{(1)} | n+m, q, \mu \rangle (\pi_{n+m, q}^{(0)} - \pi_{n, q}^{(0)}) + \frac{\gamma_0}{2} \langle n, q, \mu | A_\mu^{(1)} | n+m, q, \mu \rangle (\pi_{n+m, q}^{(0)} + \pi_{n, q}^{(0)}) - \gamma_0 \sum_{n', q', \sigma'} \int_{-\hbar k}^{\hbar k} dp \sum_m N_m(p) \langle n, q, \mu | (B_m^{(1)})^\dagger e^{-ipZ/\hbar} | n', q', \mu' \rangle \langle n', q', \mu' | B_m^{(0)} e^{ipZ/\hbar} | n+m, q, \mu \rangle \pi_{n', q'}^{(0)}. \quad (55)$$

The first term is associated with the probe-induced coupling between levels n and $n + m$ and involves the population difference between these levels. This term corresponds to the usual contribution to Raman resonances. The second and third terms describe the effect of the probe on the radiative relaxation part of the Bloch equations. These terms, which exist even when there are no population differences between the levels, correspond to the radiative relaxation-induced extra resonances considered by Bogdan, Downer, and Bloembergen [20] for the case of four-wave mixing and which have been recent-

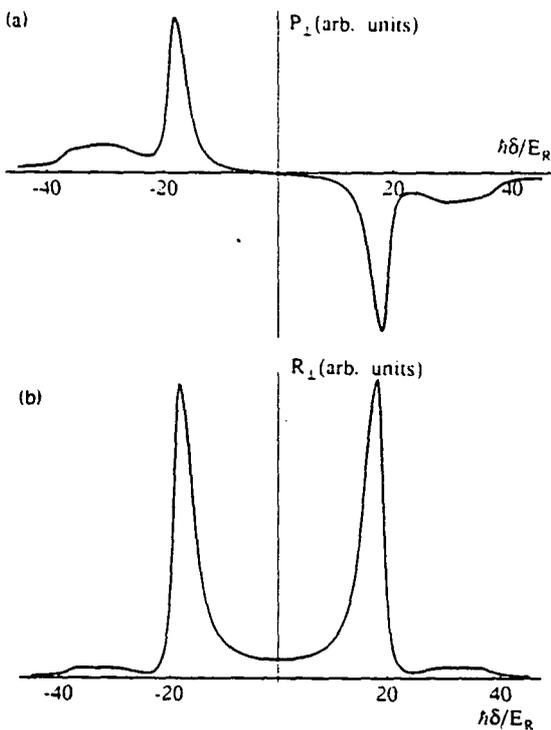


FIG. 3. Raman spectra for probe transmission and phase conjugation in the $\kappa=1$ polarization case. These spectra were obtained for a detuning $\Delta = -10\Gamma$, $U_0/E_R = 100$, by considering the first 40 band states with Bloch index $q=0,1$. Only the first Raman resonances and the first overtones are represented. (a) Probe transmission spectrum. Whereas the typical pumping rate Γ' is equal to $15E_R/\hbar$, the width of the Raman resonances are on the order of $5E_R/\hbar$ because of the Lamb-Dicke effect. The Raman resonances are centered at $\delta = \omega_p - \omega \approx \pm\Omega_v$. The first overtones are much broader than the Raman resonances because of the contribution of high bound vibrational levels which are less affected by the Lamb-Dicke effect. The energy separation between these levels is less than $\hbar\Omega_v$, so that the overtones are not exactly located at $\delta = \omega_p - \omega \approx \pm 2\Omega_v$, due to the optical potential anharmonicity. (b) Phase-conjugate spectrum. This spectrum provides the same information as the probe transmission spectrum. In particular, the Raman resonances and the first overtone are clearly visible. Note that this calculation does not take into account the effects related to the saturation of the optical transition. Such effects would have a contribution independent on the probe frequency. The interference with the contribution due to the ground state only, which does not have the same sign for $\delta > 0$ and $\delta < 0$, can lead in experimental spectra to Raman resonances of different weights.

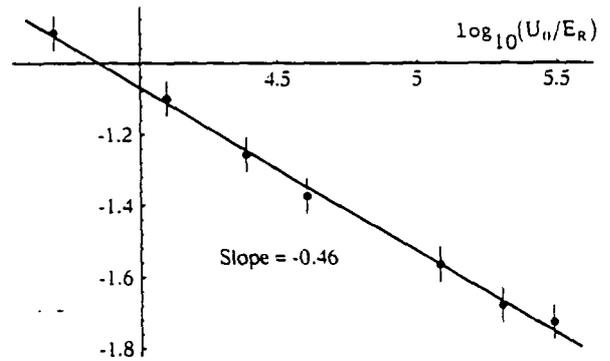


FIG. 4. Ratio of the width of the first Raman resonances to Γ' vs the dimensionless parameter U_0/E_R for a detuning $\Delta = -10\Gamma$ in the $\kappa=1$ polarization case (log-log representation). The variation is in agreement with the $\sqrt{E_R/U_0}$ law obtained in the Lamb-Dicke limit.

ly observed on probe transmission (two-wave mixing resonances) [21,22].

An example of theoretical Raman spectrum is shown in Fig. 3 for both probe transmission [Fig. 3(a)] and phase conjugation [Fig. 3(b)]. The resonances have been calculated for $m=1$ and 2 (first overtone). As previously mentioned, Raman spectra exhibit resonances whose width is smaller than the typical pumping rate Γ' . The dependence of the ratio of the width of the first resonance to Γ' versus the dimensionless parameter U_0/E_R is in good agreement with the simple law (19) obtained in the Lamb-Dicke limit (Fig. 4). In the range considered in Fig. 5, the position of the first Raman resonances is also in good agreement with the $\sqrt{U_0/E_R}$ law, but its exact position exhibits a slight shift compared to the value calculated for a harmonic oscillator, which is due in particular to the potential anharmonicity. In contrast, the position of the resonances is in reasonable agreement with the energy difference between two deep adjacent bands calcu-

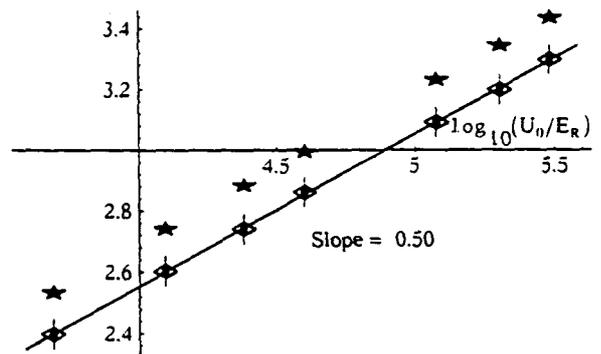


FIG. 5. Position of the first Raman resonances (represented by diamonds) vs the dimensionless parameter U_0/E_R for a detuning $\Delta = -10\Gamma$ in the $\kappa=1$ polarization case (log-log representation). The position dependence is in very good agreement with the $\sqrt{U_0/E_R}$ law corresponding to a harmonic approximation. However, the exact position is slightly different from the expected Ω_v value (represented by stars). This shift is due in particular to anharmonicity of the optical potential.

lated from the exact potential. However, for small values of U_0/E_R ($U_0/E_R < 50$), the Raman resonances result from a sum of curves centered at different locations because of the potential anharmonicity so that the comparison becomes meaningless. In addition, for large values of U_0/E_R ($U_0/E_R > 500$) the shape of the resonances clearly demonstrates the occurrence of different relaxation time constants associated with the different damping rates of the eigenmodes of the Bloch operator.

The amplitude I_2 of the first overtone is always much smaller than the amplitude of the first Raman resonance I_1 , and the ratio I_2/I_1 decreases when U_0/E_R increases. This variation is a consequence of the Lamb-Dicke effect. More precisely, if terms of the order of $k\Delta Z \approx (E_R/U_0)^{1/4}$ such as $\langle \phi_{n+1} | kZ | \phi_n \rangle$ (obtained in the expansion of terms like e^{2ikZ} found in $U_{\pm}^{(1)}$ and $A_{\pm}^{(1)}$ in power of kZ) are sufficient to induce the first Raman resonance, one should consider terms of the order of $(k\Delta Z)^2$ such as $\langle \phi_{n+2} | (kZ)^2 | \phi_n \rangle$ to excite the first overtone. In the Lamb-Dicke regime where $k\Delta Z \ll 1$, the ratio I_2/I_1 is thus expected to decrease when U_0/E_R increases. Moreover, in the case of very deep potential wells (large values of U_0) the contribution of the lowest bands to the first overtone can become negligible compared to the contribution of higher bound vibrational levels which are less populated. These levels, which cannot be approximated by harmonic potential eigenstates, are separated by less than Ω_v so that the center of the first overtone is not located around $2\Omega_v$ but appears closer to the first Raman resonance. These predictions are in good agreement with a very recent experiment [16] where overtones have been observed.

The fact that optical phase conjugation displays a resonant enhancement when δ coincides with the energy difference between two bound states in the optical potential is very similar to the resonant enhancement of nonlinear susceptibility in quantum wells [23]. One might in fact describe the present system as an *atomic quantum well*.

One further possibility with the Raman resonances would be the observation of substructures in the Raman spectra due to the anharmonicity of the potential. It turns out that such structures arise only for large detunings and small values of U_0/E_R ($U_0/E_R = 40$ and $\Delta = -20\Gamma$ are typical) for which the substructures are not hidden by the width of the different contributions. In contrast, it seems extremely difficult to obtain evidence for the occurrence of a *band* structure different from the structure of energy levels in a single potential well. Indeed, the width of the lowest bands due to tunneling transition to an adjacent potential well (through the potential barrier) is much smaller than the width induced by interaction with light.

E. Rayleigh resonances

As experimentally shown in [3], probe transmission spectra display amazing resonances at the center of the spectrum where $\delta \approx 0$. These resonances have uncommon shapes, very steep slopes, and depend dramatically on the probe polarization. In fact, these resonances are strongly

connected to the two-wave mixing resonances (also called stimulated Rayleigh or two-beam coupling resonances) that have been observed in atomic vapors [24,25,21]. These resonances are generally associated with the excitation of a slow atomic observable by the combined effect of a pump beam and a probe beam. The subsequent interaction of the pump beam with the atomic observable which is not in phase with the excitation (because of the atomic response time) leads to an energy transfer between probe and pump which exhibits a resonance when the two frequencies differ by the inverse of the atomic response time. Similar effects occur in the molasses with the additional interest of the existence of effects due to atom localization and the additional complexity of the existence of several response times associated with the various eigenstates of the Bloch operator. It is the aim of this section to give a detailed interpretation of such resonances for the case of a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ atomic transition.

1. Adiabatic states

In order to give simple physical pictures and to simplify numerical calculations, we will not base our description here on the eigenstates of the Hamiltonian $H^{(0)}$ in the absence of probe but on the eigenstates of the total Hamiltonian H . In the limit where (7) is fulfilled, it is possible to use an *adiabatic approximation* [26], so that the eigenstates $|n, q, \mu\rangle$ of H can easily be expressed in terms of those of $H^{(0)}|n, q, \mu\rangle$:

$$|n, q, \mu\rangle = |n, q, \mu\rangle + \epsilon [|n, q, \mu\rangle_+^{(1)} e^{-i\delta t} + |n, q, \mu\rangle_-^{(1)} e^{i\delta t}], \tag{56}$$

with

$$|n, q, \mu\rangle_+^{(1)} = \sum_{n' \neq n} \frac{\langle n', q, \mu | U_{\mu}^{(1)} | n, q, \mu \rangle}{E_{n,q} - E_{n',q}} |n', q, \mu\rangle, \tag{57a}$$

$$|n, q, \mu\rangle_-^{(1)} = \sum_{n' \neq n} \frac{\langle n', q, \mu | (U_{\mu}^{(1)})^\dagger | n, q, \mu \rangle}{E_{n,q} - E_{n',q}} |n', q, \mu\rangle. \tag{57b}$$

In this basis, it is then possible to use the secular approximation, so that the density matrix modified by the probe is diagonal. It follows that only the populations of the adiabatic band states $|n, q, \mu\rangle$ are modified, and simple physical pictures can be obtained.

The source term can be split into two different parts:

$$S = S_{\text{diss}} + S_{\text{reac}}, \tag{58}$$

with

$$\begin{aligned} \overline{\langle n, q, \mu | S_{\text{diss}} | n, q, \mu \rangle} &= \gamma_0 \langle n, q, \mu | A_{\mu}^{(1)} | n, q, \mu \rangle \overline{\pi}_{n, q}^{(0)} \\ &\quad - \gamma_0 \sum_{n', q', \mu'} \int_{-\hbar k}^{\hbar k} dp \sum_m N_m(p) \langle n, q, \mu | (B_m^{(1)})^\dagger e^{-ipZ/\hbar} | n', q', \mu' \rangle \langle n', q', \mu' | B_m^{(0)} e^{ipZ/\hbar} | n, q, \mu \rangle \overline{\pi}_{n', q'}^{(0)}, \end{aligned} \quad (59)$$

and

$$\begin{aligned} \overline{\langle n, q, \mu | S_{\text{reac}} | n, q, \mu \rangle} &= \gamma_0 [\langle n, q, \mu | A^{(0)} | n, q, \mu \rangle_+^{(1)} + \langle n, q, \mu | A^{(0)} | n, q, \mu \rangle_-^{(1)}] \overline{\pi}_{n, q}^{(0)} \\ &\quad - \gamma_0 \sum_{n', q', \mu'} \int_{-\hbar k}^{\hbar k} dp \sum_m N_m(p) \beta(n, q, \mu; n', q', \mu'; p) \overline{\pi}_{n', q'}^{(0)}, \end{aligned} \quad (60)$$

where

$$\begin{aligned} \beta(n, q, \mu; n', q', \mu'; p) &= \langle n, q, \mu | (B_m^{(0)})^\dagger e^{-ipZ/\hbar} | n', q', \mu' \rangle \langle n', q', \mu' | B_m^{(0)} e^{ipZ/\hbar} | n, q, \mu \rangle \\ &\quad + \langle n, q, \mu | (B_m^{(0)})^\dagger e^{-ipZ/\hbar} | n', q', \mu' \rangle_+^{(1)} \langle n', q', \mu' | B_m^{(0)} e^{ipZ/\hbar} | n, q, \mu \rangle \\ &\quad + \langle n, q, \mu | (B_m^{(0)})^\dagger e^{-ipZ/\hbar} | n', q', \mu' \rangle_-^{(1)} \langle n', q', \mu' | B_m^{(0)} e^{ipZ/\hbar} | n, q, \mu \rangle \\ &\quad + \langle n, q, \mu | (B_m^{(0)})^\dagger e^{-ipZ/\hbar} | n', q', \mu' \rangle \langle n', q', \mu' | B_m^{(0)} e^{ipZ/\hbar} | n, q, \mu \rangle_+^{(1)}. \end{aligned} \quad (61)$$

Despite the apparent complexity of this expression, the physical interpretation is rather clear and allows us to understand the features of the central resonances. The dissipative part of the source term accounts for the modification of the *optical pumping in the presence of the probe* on the populations of the *eigenstates in the absence of the probe*. The reactive part of the source term stands for the effect of the *optical pumping in the absence of the probe* on the population of the *eigenstates modified by the probe*. These effects will be discussed in detail in the following for the two polarization configurations of the probe.

2. Evolution of populations: Global analysis

The precise influence of the probe beam on the populations of the vibrational levels is complex and will be discussed in the following. In a first step, we want to give simple ideas about the way these population modifications lead to probe amplification or absorption. For this purpose, it is enough to characterize these population modifications by use of simple symmetry considerations. Due to the invariance of the L operator by \mathcal{T} (translation by $\lambda/4$ along Oz and exchange of internal state)

$$\mathcal{T}L\mathcal{T}^+ = L, \quad (62)$$

the properties of the source terms for the two polarization configurations of the probe

$$\mathcal{T}S(\parallel)\mathcal{T}^+ = S(\parallel), \quad (63a)$$

$$\mathcal{T}S(\perp)\mathcal{T}^+ = -S(\perp) \quad (63b)$$

provide important information about the density-matrix modification $\sigma^{(1)}$. Indeed, combining (47), (62), and (63), we obtain

$$\mathcal{T}\sigma_{\parallel}^{(1)}\mathcal{T}^+ = \sigma_{\parallel}^{(1)}, \quad (64a)$$

$$\mathcal{T}\sigma_{\perp}^{(1)}\mathcal{T}^+ = -\sigma_{\perp}^{(1)}, \quad (64b)$$

which clearly shows that in the $\mathcal{K}=\parallel$ configuration the population modifications are *identical* in each potential well and the total population of a given well is *unchanged* [Fig. 6(b)], whereas in the $\mathcal{K}=\perp$ configuration the population modifications of the two potentials are *opposite* and there occurs a *net population transfer* from one potential to the other [Fig. 6(c)].

When calculating the power transfer $P_{\mathcal{K}}$ from the atoms to the probe field one has to calculate the mean value of the operator $\rho_{\mathcal{K}}$ [Eq. (52)] by means of the modified density matrix $\sigma^{(1)}$. For the two polarization configurations of the probe, $\rho_{\mathcal{K}}$ is given by

$$\rho_{\parallel} = \frac{\sqrt{2}}{3} (I - J_z e^{-2ikz}), \quad (65a)$$

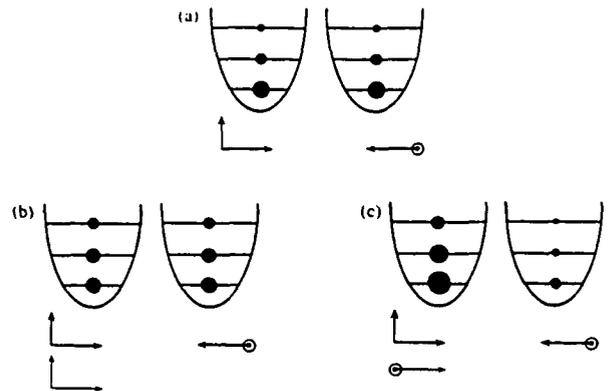


FIG. 6. Probe-induced population modifications. (a) In the absence of probe, the different optical potential wells are equally populated. (b) In the $\mathcal{K}=\parallel$ polarization configuration, the probe beam induces modifications of the population of the vibrational levels, but these modifications are the same in each potential well, so that the global population of each potential well remains constant. (c) In the $\mathcal{K}=\perp$ polarization configuration the probe induces population transfer from one potential well to the adjacent ones, so that the global population of each potential well oscillates in time with frequency $\omega_p - \omega$.

and

$$p_1 = \frac{\sqrt{2}}{3} (-J_z + Ie^{-2ikz}), \quad (65b)$$

where I is the identity operator for the internal degrees of freedom which accounts for atomic density effects and J_z is the component of the angular momentum along Oz . The terms dependent on z stand for effects due to the *backscattering* of the pump wave which counterpropagates with the probe on a *magnetization* ($\mathcal{R}=\parallel$) or a *density* ($\mathcal{R}=\perp$) grating. The terms independent on z represent contributions due to the copropagating pump beam interacting with a population ($\mathcal{R}=\parallel$) or a magnetization ($\mathcal{R}=\perp$) global modification. We now precise the interpretation and the different contributions of these terms.

a. Configuration $\mathcal{R}=\parallel$. Because of the conservation of the total atomic population, the first term of (65a) does not contribute to the power transfer. It follows that the central structure of the probe transmission spectrum only results from the backscattering of the counterpropagating pump wave on the magnetization grating induced by the probe. Let us describe how the magnetization grating can give rise to such a transfer.

In the absence of the probe beam, due to localization of atoms at the bottom of the potential wells associated with a given internal state $|g, +\rangle$ or $|g, -\rangle$, the atomic molasses looks like an antiferromagnetic medium, whose magnetization is alternatively positive and negative each $\lambda/4$. The presence of the probe induces population changes which are exactly the same in every potential well [Fig. 6(b)]. The resulting spatial modulation of the magnetization is thus also alternatively positive and negative each $\lambda/4$, and its amplitude varies in time with period $2\pi/\delta$. The scattering of the counterpropagating pump beam on this time-modulated magnetization results in a wave whose polarization, frequency, and direction of propagation coincide with those of the probe beam, so that it can interfere with it. The phase of the scattered wave varies with the sign of the magnetization and thus changes sign every $\lambda/4$. The reason for this phase variation is that the elementary process is a Faraday rotation of the counterpropagating pump-beam polarization around the atomic magnetization [21]. Because the sign of the rotation changes for opposite values of the magnetization, the wave scattered by the atoms having a positive magnetization experiences an intrinsic π phase shift with respect to the wave scattered by atoms having the opposite magnetization. This π phase shift compensates for the π phase shift due to the propagation of the backscattered wave between two magnetization planes which are $\lambda/4$ apart, so that the backscattered pump beam can interfere constructively with the probe beam. As shown in [21], one can obtain absorption or amplification of the probe depending on the sign of δ . The range of values of δ over which amplification or absorption is observed gives an estimate of the response times of the molasses.

To have an efficient constructive interference for the backscattered light, it is fundamental that the atoms are well localized every $\lambda/4$. If we consider, for example, the delocalized wave function of a highly excited band, the

backscattering may occur from any position in the molasses, leading to a broad distribution for the phase shift due to propagation. The resulting effect will be a destructive interference on the backscattered wave. The existence of the central resonance for this polarization configuration has thus two important consequences. On one hand it proves the existence of well-localized states near the bottom of the potential wells. On the other hand it shows that there is a large-scale spatial order with atoms having opposite magnetizations every $\lambda/4$. Such a structure obviously presents some analogy with an antiferromagnetic medium.

b. Configuration $\mathcal{R}=\perp$. Let us distinguish between the different contributions of the two pump waves. The copropagating pump wave is sensitive to the global magnetization of the atomic sample [Eq. (65b)]. In the absence of probe, due to the antiferromagnetic character of the molasses, the average magnetization of the sample is equal to zero. In contrast, the interaction with the probe induces net population transfers from one potential well to adjacent ones [Fig. 6(c)] which result in a net magnetization of the medium. Because the medium is now optically active [21], the copropagating pump wave undergoes a net polarization rotation (associated with a change of frequency [21]), and can interfere constructively with

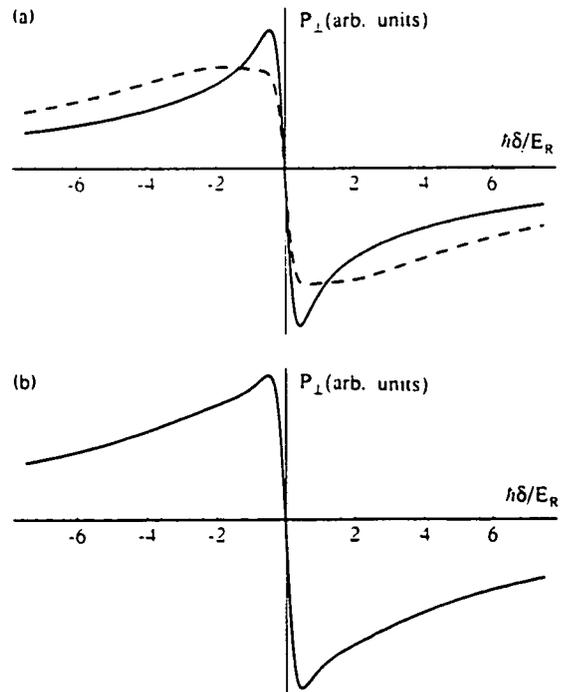


FIG. 7. Central structure of the probe transmission spectrum in the conditions of Fig. 3. (a) The contribution of the magnetization and of the density modulation are represented, respectively, by a dashed and a solid line. This figure clearly shows that both effects are important and contribute to the signal. (b) The sum of these two contributions gives a curve with a steep slope at the center and broad wings in agreement with experimental observations. The unusual shape of the central resonance is due to the existence of various time constants in the population dynamical evolution.

the probe beam. Note that this contribution does not involve atom localization, so that even excited band states contribute to the signal. The counterpropagating pump wave which has the same polarization as the probe can undergo a Bragg diffraction on the density grating induced by population transfers from one potential to the other. Note that the density grating induced by the probe has a spatial period equal to $\lambda/2$. Such a periodicity is important for having a constructive Bragg scattering in the backward direction since the phase shift due to propagation between two planes distant from $\lambda/2$ is just equal to 2π . This diffraction is also associated with a change of frequency, so that the backscattered wave can interfere constructively with the probe beam. This contribution due to the backscattering process involves atom localization. It is responsible for a significant part of the signal as can be seen in Fig. 7(a) where the relative weight of these two contributions is presented for $U_0 = 100E_R$. It clearly shows that both effects are important and contribute to the central structure.

3. Dissipative effects

The interpretation of the dissipative part of the source term will be based on semiclassical arguments, describing the effect of light on atoms at rest at a given point z . This information can then be used to obtain interesting pictures in the band model by averaging the semiclassical quantities over the spatial distribution of the band wave functions. Let us consider an atom at rest at a given point z , irradiated by the pump beams and the probe. In the case of a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{1}{2}$ transition, the stationary values $\pi_+(z)$ and $\pi_-(z)$ of the populations of the Zeeman sublevels $|g, +\rangle$ and $|g, -\rangle$ are solutions of the system

$$\begin{aligned} I_+(z)\pi_-(z) &= I_-(z)\pi_+(z), \\ \pi_-(z) + \pi_+(z) &= 1, \end{aligned} \quad (66)$$

where $I_+(z)$ and $I_-(z)$ are the intensities of the σ^+ and σ^- polarization component of the field at point z , normalized to the intensity of the pump field ($2E_0^2$). Using perturbation theory to first order in ε , this system transforms into

$$\begin{aligned} \pi_{\pm}(z) &= \pi_{\pm}^{(0)}(z) + \varepsilon\pi_{\pm}^{(1)}(z), \\ I_{\pm}(z) &= I_{\pm}^{(0)}(z) + \varepsilon I_{\pm}^{(1)}(z), \\ \pi_+^{(0)}(z) &= \sin^2(kz), \\ \pi_-^{(0)}(z) &= \cos^2(kz), \\ \pi_+^{(1)}(z) &= -\pi_-^{(1)}(z) = I_+^{(1)}(z)\cos^2(kz) - I_-^{(1)}(z)\sin^2(kz), \end{aligned} \quad (67)$$

which clearly shows that the modification of the steady state due to the dissipative part of the source term depends only upon the intensity components $I_{\pm}^{(1)}$, which are evaluated in the following.

a. Configuration $\mathbf{K} = \parallel$. The combination of the probe with the two pump beams leads to

$$\begin{aligned} I_{\pm}^{(1)}(z) &= \mp \cos(2kz - \delta t) + \cos(\delta t), \\ \pi_{\pm}^{(1)}(z) &= \mp \sin(\delta t)\sin(2kz). \end{aligned} \quad (68)$$

The resulting intensity is space and time dependent and, when averaged over the spatial extension of a band wave function, has an alternative σ^+ and σ^- dominant component. It has no net effect on the populations of the vibrational levels [Fig. 8(a)]. This result can be understood by considering the intensities $I_{\pm}^{(1)}(z)$ in the rotating frame

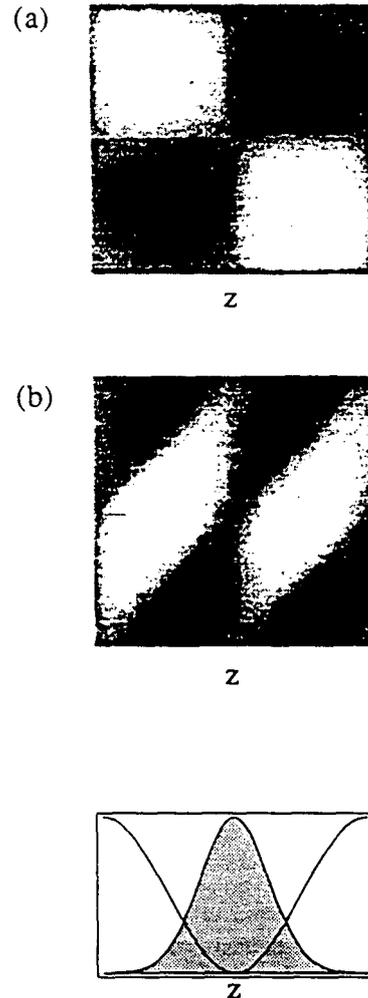


FIG. 8. Semiclassical representation of the probe-induced dissipative effects. The density plots represent the temporal evolution of $\pi_{\pm}^{(1)}(z)$. Black (white) color denotes a negative (positive) value of $\pi_{\pm}^{(1)}(z)$. It is possible to understand the effect of the probe by averaging $\pi_{\pm}^{(1)}(z)$ over the spatial extension of a band wave function (represented in gray at the bottom of the figure, for a single potential well). (a) $\mathbf{K} = \parallel$ polarization configuration. The average value of $\pi_{\pm}^{(1)}(z)$ for any band state is clearly equal to zero, so that the probe-induced dissipative effect does not lead to population changes. (b) $\mathbf{K} = \perp$ polarization configuration. The average value of $\pi_{\pm}^{(1)}(z)$ for any band state is nonzero and oscillates in time. The probe-induced dissipative effect thus leads to alternative population transfers from one potential well to the other. It is interesting to note that the value of $\pi_{\pm}^{(1)}(z)$ for $z=0$ is constant equal to zero, which means that an infinitely localized atom would not be affected (in the semiclassical limit) by the dissipative effects due to the probe. We have checked that the population of the lowest vibrational levels are less affected than the others for sufficiently deep potential wells.

for the probe

$$[I_{\pm}^{(1)}]_{RF}(z) = 1 \mp \cos(2kz), \tag{69}$$

which is nothing but the intensities due to the pump beams alone. S_{diss} is thus nothing but $-L \cdot \sigma^{(0)}$, which is by definition equal to zero, so that the dissipative effects of the probe have no influence on the probe transmission spectrum. This result is typical of a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ atomic transition.

b. Configuration $\kappa=1$. Combining the probe with the two pump beams, we obtain

$$I_{\pm}^{(1)}(z) = \cos(2kz - \delta t) \mp \cos(\delta t), \tag{70}$$

$$\pi_{\pm}^{(1)}(z) = \pm \frac{1}{2} [\cos(4kz - \delta t) - \cos(\delta t)].$$

The resulting intensity is space and time dependent and, when averaged over the spatial extension of a band wave function, has an alternative σ^+ and σ^- dominant component. Its net effect on the populations corresponds to an alternative departure from the wells of potential $U_{\pm}^{(0)}$ to the wells of potential $U_{\mp}^{(0)}$ [Fig. 8(b)]. It is interesting to note that (70) is equal to zero for $z = m\lambda/4$ (m is an integer), which corresponds to the bottom and the top of the potential wells. It follows that the population of an infinitely localized atom would not be modified by the dissipative effects of the probe. The departure from one potential to the other is due to the optical pumping induced by the probe beam. Typical evolution times on the order of γ_0^{-1} are found for this process which involves the global equilibrium between levels $|g, -\rangle$ and $|g, +\rangle$.

4. Reactive effects

The reactive part of the source term accounts for the time-dependent modification of the potentials U_{\pm} and of the band wave functions due to the interaction with the probe. Because of the probe-induced translation of the optical potential and modification of its curvature, the steady-state atomic populations are no longer in equilibrium with the pump beam. Optical pumping due to the cooling beam then tends to adapt the populations to the time-dependent shape of the potentials. We discuss, in the following, the two polarization configurations of the probe, the way potentials are modified, their effect on the populations, and the different time constants involved in the atomic response to the probe perturbation.

a. Configuration $\kappa=||$. The periodic perturbation (period $T=2\pi/\delta$) of the potentials induced by the probe is represented in Fig. 9(a) at four different times. At $t=0$ ($0.5 T$) the depth of potentials U_{-} and U_{+} are modified by the same quantity and are smaller (larger) than U_0 . As a result, the atomic populations in each potential will be modified to reach the equilibrium state corresponding to the new depth of the potentials. Due to the symmetry between potentials U_{-} and U_{+} , this equilibrium does not imply a global population transfer from one potential to the other. At $t=0.25 T$ ($0.75 T$) the depth of potentials U_{-} and U_{+} is not modified, but their bottom is translated by a small amount on the left (right). This translation is also responsible for a modification of the steady-state

populations. The typical time constant involved in these processes is the time necessary to reach the equilibrium between the populations of the lowest band states which are affected by the probe-induced modifications of the potential. In order to estimate this time constant (related to the width of the central resonance), we distinguish two limiting cases.

(i) Case of deep potential wells. In the case of deep potential wells, the total steady-state population of the continuum states is negligible [1] and the coupling between the bound and the continuum states is very weak. As a consequence, the dynamical properties of the system are mainly due to the response time of the lowest bands population, which is considerably reduced due to the Lamb-

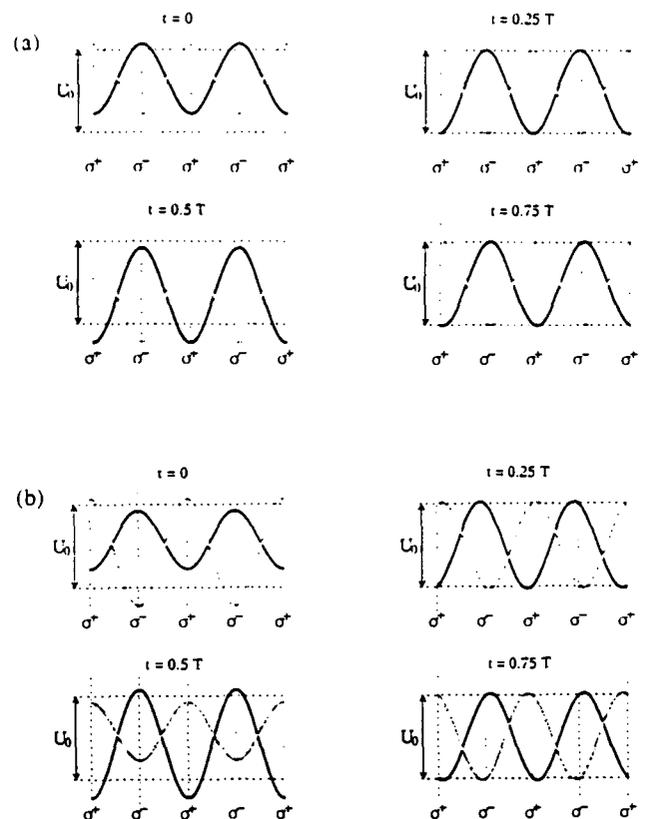


FIG. 9. Probe-induced modifications of the optical potential. The dashed lines permit us to localize the potential wells in absence of probe. The black (gray) potential corresponds to the $|g, +\rangle$ ($|g, -\rangle$) ground-state Zeeman sublevel. The local polarization of the cooling wave is indicated. We have represented the potential shapes at four different times during a period $T=2\pi/|\omega-\omega_p|$. At $t=0$ and $0.5 T$ the potential depth is modified, whereas at $t=0.25 T$ and $0.75 T$ the potential wells are translated in space. These potential changes lead to population modifications due to the tendency of the cooling beams to adapt the population distribution to the new potential shape. (a) $\kappa=||$ polarization configuration. The potential wells associated with the two Zeeman sublevels are simultaneously modified so that the population changes are the same in each potential well. (b) $\kappa=\perp$ polarization configuration. The potential wells associated with the two Zeeman sublevels are modified with a phase delay of π , so that the population changes are opposite in adjacent potential wells.

Dicke effect (see Sec. I B). The width of the central structure is thus expected to be on the order of Γ_0^{eff} [Eq. (17)] [Fig. 10(a)].

(ii) Case of shallow optical potential wells. As mentioned in Sec. I C, the physical characteristics of the atomic medium in the case of shallow optical potential is significantly different from the case of deep potentials. In the present situation, the total steady-state population of the continuum and its coupling with the bound states are not negligible. In order to estimate the typical damping time of the populations, we consider a semiclassical description of the system in terms of Wigner distributions w_{\pm} independent on z (see Sec. I C) which satisfy a Fokker-Planck equation [10]. Similarly to the description of the atomic system in terms of a Bloch operator (Sec. I D) the damping rates for atomic variables are here given by the eigenvalues of the associated Fokker-Planck operator. Due to symmetry properties of the system by exchange of the two internal Zeeman sublevels (unitary transformation \mathcal{T} of Sec. I B), the eigenfunctions of the Fokker-Planck operator which are excited by the probe

in the $\mathcal{K}=\parallel$ polarization configuration satisfy (63.a):

$$w_+(p) = w_-(p) = w(p) \quad (71)$$

Following [10], the corresponding eigenvalue problem can be written:

$$-\lambda w \approx D_0 \frac{\partial^2 w}{\partial p^2} \quad (72)$$

where $D_0 = \frac{11}{18} \hbar^2 k^2 \Gamma' \approx \hbar^2 k^2 \Gamma' / 2$ is the momentum diffusion coefficient and $-\lambda$ is the real negative eigenvalue associated with w . As mentioned in Sec. I C, w is given by equation (22). The corresponding value for λ is given in equation (23) where p_0 stands for the maximum momentum excited by the probe beam. In order to evaluate this quantity, we note that the reactive part of the source term (60) which depends on the modification of the band states decreases in momentum space as $1/p$ [the denominator of (57) is proportional to $1/p$ for a continuum state corresponding to momentum p]. A rigorous calculation based on the Bloch equations shows that a cutoff in momentum space arises for $p_0 \approx 60$ and that it is relatively insensitive to the potential depth for small values of U_0/E_R . This is not surprising since both the continuum states and the distribution of population in the continuum are only slightly affected by the optical potential. The calculation also proves that the exact eigenvalues are in good agreement with (72) and that the eigenstates $w(p)$ are consistent with a sinusoidal shape, even if their amplitude decreases with p to satisfy $\int w(p) dp = 0$ (conservation of the total population). As expected, these modes are coupled with the lowest bound states. This condition is necessary for the eigenmodes to contribute to the probe transmission spectrum because the central resonance arises from a backscattering of a pump wave onto a magnetization grating modulation (Sec. II E 2 a), so that only the well-localized states play a role in the process. The occurrence of such long damping times on the central resonance is visible on Fig. 10(b) where we also note an inversion of this central structure.

b. Configuration $\mathcal{K}=\perp$. The periodic perturbation (period $T = 2\pi/\delta$) of the potentials induced by the probe is represented on Fig. 9(b) at four different times. At $t=0$ and $0.5 T$, the depth of potentials U_- and U_+ are differently modified: one is larger than U_0 , the other is smaller. As a result the atomic populations will adjust to reach the equilibrium state corresponding to the new depth of the potentials, but contrary to the previous case, this equilibrium requires a net population transfer from one potential to the other. At $t=0.25$ and $0.75 T$, the depth of potentials U_- and U_+ are not modified, but their bottom are translated (in different directions), which also lead to population modifications. Similarly to the previous polarization configuration, we estimate the width of the central resonance in two limiting cases.

(i) Case of deep potential wells. In contrast with the $\mathcal{K}=\parallel$ polarization configuration, the atomic system here goes towards equilibrium by two means. First, dynamical population modifications occur to adapt the population distribution to the modulated depth of the potential. Second, this adaptation implies a net population transfer

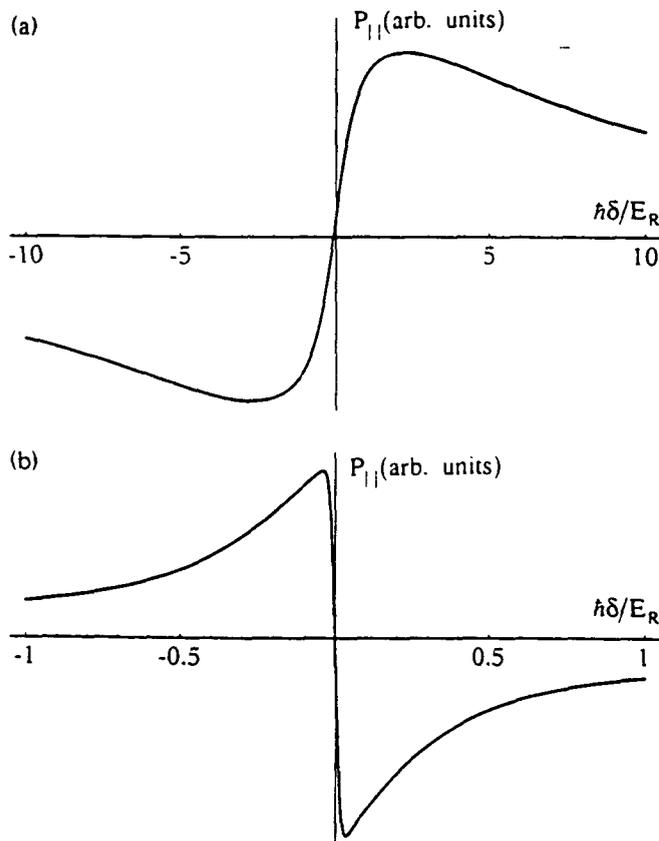


FIG. 10. $\mathcal{K}=\parallel$ polarization configuration. Dependence of the shape of the central resonance on the potential depth. When not mentioned, the conditions are the same as in Fig. 3. (a) Case of deep potential wells ($U_0/E_R = 200$, $\hbar\Gamma' = 30E_R$). The central resonance looks like a dispersion of width $\approx \Gamma_0^{\text{eff}} \approx 1E_R/\hbar$. (b) Case of shallow optical potential wells ($U_0/E_R = 40$, $\hbar\Gamma' = 6E_R$). The central resonance looks like a dispersion of width $\approx 10^{-3} \Gamma' \approx 0.03E_R/\hbar$. Note the change of sign of the resonance in the two situations.

from one potential to the other. In the case of deep potential wells where the dynamical properties of the system are mainly due to the response time of the lowest bands populations, one expects these processes to occur, respectively, at a rate $\Gamma_0^{(1)}$ and $\Gamma_0^{(2)}$ (see Sec. I B), which are both on the order of Γ_0^{eff} and smaller than Γ' because of the Lamb-Dicke effect.

The actual shape of the central structure results from the combined effect of the dissipative and the reactive part of the source term. It is thus the superposition of two structures having a width on the order of Γ_0^{eff} and of γ_0 (see Sec. III D 3 b), which leads to an unusual cliff shape [Fig. 11(a)].

(ii) Case of shallow optical potential wells. Similarly to the $\kappa=||$ polarization case, the eigenfunctions of the Fokker-Planck operator which are excited by the probe in the $\kappa=\perp$ configuration satisfy (63b)

$$w_+(p) = -w_-(p) = w(p). \quad (73)$$

Following [10], the corresponding eigenvalue problem

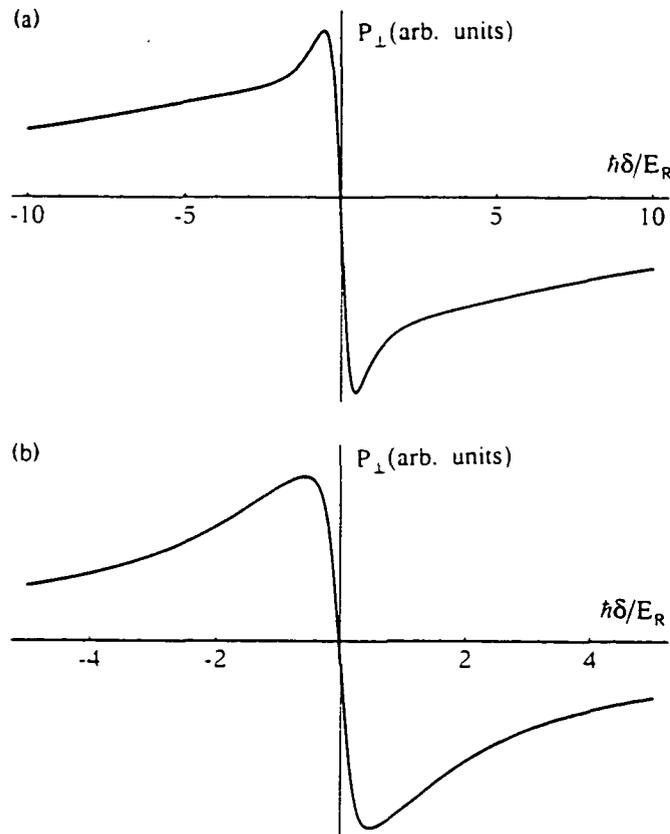


FIG. 11. $\kappa=\perp$ polarization configuration. Dependence of the shape of the central resonance on the potential depth. When not mentioned, the conditions are the same as in Fig. 3. (a) Case of deep potential wells ($U_0/E_R=200$, $\hbar\Gamma'=30E_R$). The cliff-shaped central resonance results from the superposition of two structures of width $\approx\gamma_0\approx 7E_R/\hbar$ and $\approx\Gamma_0^{\text{eff}}\approx 1E_R/\hbar$. (b) Case of shallow optical potential wells ($U_0/E_R=40$, $\hbar\Gamma'=6E_R$). The central resonance looks like a dispersion of width $\approx\gamma_0\approx 1E_R/\hbar$.

can be written

$$(\gamma_0 - \lambda)w \approx D_0 \frac{\partial^2 w}{\partial p^2} \quad (74)$$

and the same reasoning as in the previous polarization case yields

$$\lambda \approx \gamma_0. \quad (75)$$

This result, which is in good agreement with the exact calculation indicates that in the case of shallow optical potentials and of the $\kappa=\perp$ polarization configuration, the central structure is no longer cliff-shaped but rather looks like a dispersion of width $\approx\gamma_0$ for which the Lamb-Dicke effect plays no significant role [Fig. 11(b)]. It is also interesting to note that the contribution to the central resonance of the backscattering on the time-modulated density grating becomes very small compared to the contribution due to the forward scattering on the magnetization grating.

III. CONCLUSION

In this paper, we have presented theoretical line shapes for probe transmission and phase-conjugate reflection in 1D lin⊥lin optical molasses. The results are in good agreement with experimental observations [3,16] and in particular prove the following points:

(i) The typical width of the resonances can be much smaller than the optical pumping rate Γ' because of atom localization (Lamb-Dicke effect).

(ii) The intensity of overtones is generally much weaker than the intensity of Raman resonances. Their positions cannot always be simply deduced from the position of the Raman resonances. Conditions in which overtones can be observed have been found.

(iii) The shape of the central resonance is very sensitive to probe polarization. This central structure corresponds to a two-wave mixing resonance [24] and its shape and width give indications on the response times of the dynamical modes of the molasses that are excited by the probe.

(iv) The central resonance results from two contributions. The first is associated with the forward scattering of the pump copropagating with the probe on a global observable of the molasses. The second corresponds to the backward scattering of the counterpropagating pump on a spatially modulated grating. This second contribution gives indication on atom localization and on the existence of a large-scale spatial order.

All these points clearly show the importance of the localized bound states and of the periodic structure in this molasses configuration. An obvious prolongation of this work is to study the probe transmission in the case of a molasses obtained with two circularly cross-polarized trapping beams. In this case, the light shifts are space independent [6] and no bound states are expected for this configuration. Apart from Raman resonances between two differently light-shifted Zeeman sublevels [27] and two-wave mixing resonances having a width on the order of the optical pumping rate, one also expects to find here narrower Rayleigh resonances due to damping phenome-

na induced by the cooling friction force. The study of this molasses configuration will be the topic of a forthcoming paper.

Extension of this work to other cooling mechanisms can also be considered. For example, magnetic assisted Sisyphus cooling [28] also leads to a periodic modulation of the light shifts. Bound states may be obtained in such potentials and Raman transitions between different levels may be observed on a probe transmission spectrum. The case where cooling below the recoil limit is achieved [29] may also be interesting to consider.

We have considered in this paper only the probe transmission and the four-wave mixing generation because these are quantities that have been experimentally observed in our group [3,16]. Other possibilities such as the study of the fluorescence spectrum are also of interest and deserves some theoretical investigation. Even if one does not expect significant differences between the information that can be obtained from these various methods, there are, however, some subtle differences such as, for example, the occurrence of a purely elastic line in the fluorescence spectrum that should be studied.

Finally, even if it appears that the present study made for a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ atomic transition is in satisfactory agreement with the experiments of [3] and [16] performed on a $J_g = 4 \rightarrow J_e = 5$ atomic transition, one can wonder whether there are some interesting specific effects for a transition starting from a ground state having an angular momentum larger than $\frac{1}{2}$. For example, the fact that the eigenstates of the Hamiltonian associated with the light shifts are tensorial products of an internal state ($|g, -\rangle$ or $|g, +\rangle$) and an external state is something peculiar to a $J_g = \frac{1}{2}$ ground state. For $J_g > \frac{1}{2}$, this is no longer true and that may have some consequences on the line shapes. Another interest of this study would be of course to achieve a quantitative comparison between experiment and theory.

ACKNOWLEDGMENTS

We would like to thank C. Cohen-Tannoudji, Y. Castin, J. Dalibard, B. Lounis, C. Salomon, P. Verkerk, and P. R. Berman for many helpful discussions.

APPENDIX: COMMENTS ABOUT ATOMIC TRANSITIONS STARTING FROM A $J_g > \frac{1}{2}$ STATE

We want here to sketch some ideas about the way to derive probe transmission (or phase-conjugate reflection) spectra for $J_g \rightarrow J_e$ atomic transitions with $J_g > \frac{1}{2}$. The transmission spectrum of the probe beam depends on the mean value of operator $\varrho_{\mathcal{R}}$ calculated from the modification of the density matrix $\sigma^{(1)}$. As in the case of a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ transition, it is convenient to express this operator by means of quantities having a well-defined physical interpretation. One finds

$$\varrho_{\parallel} = (\beta_0 I - 2\beta_2 \{ \mathbf{J} \cdot \mathbf{e}_p \}^2) + (\beta_1 J_z + i\beta_2 \{ J_x J_y + J_y J_x \}) e^{-2ikz}, \quad (\text{A1a})$$

$$\varrho_{\perp} = (\beta_1 J_z + i\beta_2 \{ J_x J_y + J_y J_x \}) + (\beta_0 I - 2\beta_2 \{ \mathbf{J} \cdot \mathbf{e}_p \}^2) e^{-2ikz}, \quad (\text{A1b})$$

with

$$\beta_0 = \frac{1}{\sqrt{6}} \frac{(2J_e + 1)}{\sqrt{2J_g + 1}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 0 \\ J_g & J_g & J_e \end{Bmatrix} + \frac{1}{3} J_g (J_g + 1) (2J_e + 1) \times \left[\frac{15(2J_g - 2)!}{(2J_g + 3)!} \right]^{1/2} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_g & J_g & J_e \end{Bmatrix}, \quad (\text{A2a})$$

$$\beta_1 = -\frac{\sqrt{3}}{2} \frac{(2J_e + 1)}{\sqrt{J_g (J_g + 1) (2J_g + 1)}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_g & J_g & J_e \end{Bmatrix}, \quad (\text{A2b})$$

$$\beta_2 = (2J_e + 1) \left[\frac{15(2J_g - 2)!}{(2J_g + 3)!} \right]^{1/2} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_g & J_g & J_e \end{Bmatrix}, \quad (\text{A2c})$$

where the quantities inside curly brackets are 6- J symbols. I is the identity operator which accounts for atomic density effects and J_z is the angular momentum along Oz ,

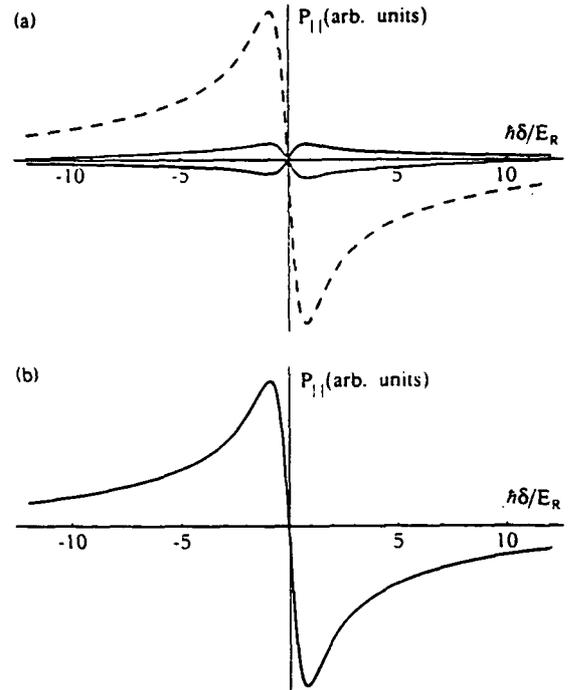


FIG. 12. Central resonance of the probe transmission spectrum in the $\mathcal{R} = \parallel$ polarization case for a $J_g = 4 \rightarrow J_e = 5$ atomic transition. The spectrum was obtained by taking into account the first 40 band states with Bloch index $q = 0, 1$ for a detuning $\Delta = -10\Gamma$ and $\hbar|\Delta|s_0/E_R = 1200$. (a) The contribution of the magnetization, the alignment and the index effects are, respectively, represented by a dashed, a solid, and a gray line. This figure clearly shows that both alignment and index effects are negligible in the case of deep optical potential wells. (b) The sum of these contributions gives a dispersionlike resonance in reasonable quantitative agreement with the experiment of [3].

which stands for polarization rotation due to magnetization gratings. In addition to these contributions, which were already present in the case of a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{1}{2}$ transition, one has to consider two additional contributions: $\{J \cdot e_p\}^2$ is the square of the angular momentum along the probe polarization which accounts for index effects on the propagation of the pump having the same polarization as the probe and $(J_x J_y + J_y J_x)$ corresponds to an alignment of the atomic medium and stands for the effects due to the probe-induced birefringence of the atomic sample. The terms depending on e^{-2ikz} account for effects due to the backscattering of the pump wave

which counterpropagates with the probe, whereas the terms independent on z represent contributions due to the copropagating pump beam.

One can wonder whether the additional contribution of the index effects and of the alignment leads to probe transmission spectra qualitatively different from those obtained in the case of a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{1}{2}$ transition. It is possible to estimate the order of magnitude of these contributions (which are both weighted by β_2) by comparison with the one of the orientation (weighted by β_1) through the calculation of the ratio β_1/β_2 . The value of this ratio is reported in the following table:

β_1/β_2	$\left \frac{J_g \rightarrow J_e = J_g - 1}{2J_g - 1} \right $	$\left \frac{J_g \rightarrow J_e = J_g}{-1} \right $	$\left \frac{J_g \rightarrow J_e = J_g + 1}{-(2J_g + 3)} \right $
-------------------	---	---	--

which shows that the index and alignment effects become negligible compared to the orientation effects in the limit of large ground-state angular momenta both for a $J_g \rightarrow J_e = J_g - 1$ and a $J_g \rightarrow J_e = J_g + 1$ atomic transition, which is the case of the $J_g = 4 \rightarrow J_e = 5$ transition of cesium used in [3]. Note, however, that in the case of small potential depths, the spatial extension of the wave functions will affect selectively the physical processes involving backscattering. For example, in the $\mathfrak{K} = \parallel$ polarization configuration, the orientation contribution will be significantly lowered and become as important as the index and alignment contributions. In contrast,

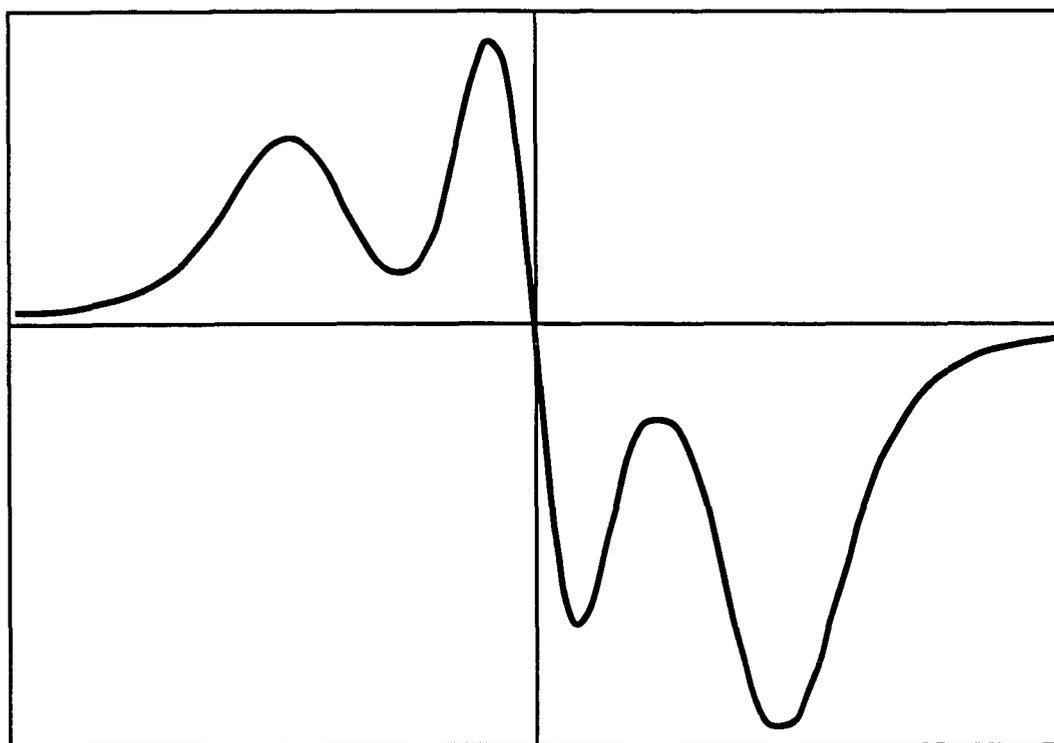
$J_g \rightarrow J_e = J_g$ atomic transitions for which all the contributions to (A1) have the same order of magnitude could lead to probe transmission spectra qualitatively different from those reported in this paper. We show in Fig. 12 the different contributions to the Rayleigh resonance of a probe transmission spectrum for a $J_g = 4 \rightarrow J_e = 5$ transition in the $\mathfrak{K} = \parallel$ polarization case. This spectrum is in reasonable quantitative agreement with the experimental observation of [3] and clearly shows that most of the signal is due to the orientation contribution which was the unique contribution in the case of a $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{1}{2}$ atomic transition.

[1] Y. Castin and J. Dalibard, *Europhys. Lett.* **14**, 761 (1991).
 [2] C. I. Westbrook, R. N. Watts, C. E. Tanner, S. L. Rolston, W. D. Phillips, P. D. Lett, and P. L. Gould, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 33 (1990); see also N. P. Bigelow and M. G. Prentiss, *ibid.* **65**, 29 (1990).
 [3] P. Verkerk, B. Lounis, C. Salomon, C. Cohen-Tannoudji, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3861 (1992).
 [4] P. Martin, in *Many-Body Physics*, 1967, Les Houches Lectures, edited by C. de Witt and R. Balian (Gordon and Breach, New York, 1968); see also C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Photons and Atoms* (Wiley, New York, 1989), p. 352.
 [5] J. Guo, P. R. Berman, B. Dubetsky, and G. Grynberg, *Phys. Rev. A* **46**, 1426 (1992); J. Guo and P. R. Berman (unpublished).
 [6] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2023 (1989).
 [7] P. J. Ungar, D. S. Weiss, E. Riis, and S. Chu, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2058 (1989).
 [8] C. Cohen-Tannoudji, in *Fundamental Systems in Quantum Optics*, Proceedings of the Les Houches Summer School of Theoretical Physics, Session LIII, edited by J. Dalibard, J. M. Raimond, and J. Zinn-Justin (Elsevier Science, Amsterdam, 1991).
 [9] J. P. Barrat and C. Cohen-Tannoudji, *J. Phys. (Paris)* **22**, 329 (1961).
 [10] Y. Castin, J. Dalibard, and C. Cohen-Tannoudji, in *Light Induced Kinetic Effects on Atoms, Ions, and Molecules*, edited by L. Moi, S. Gozzini, C. Gabbanini, E. Arimondo, and F. Strumia (ETS Editrice, Pisa, 1991), p. 363.
 [11] W.-K. Tung, *Group Theory in Physics* (World Scientific, Singapore, 1985); N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (HRW International editions, New York, 1976).
 [12] D. Wineland and W. Itano, *Phys. Rev. A* **20**, 1521 (1979).
 [13] Indeed, an experiment recently done at NIST shows that Rayleigh scattering is the dominant feature of the spontaneous emission spectrum [P. S. Jessen, C. Gerz, P. D. Lett, W. D. Phillips, S. L. Rolston, R. J. C. Spreeuw, and C. I. Westbrook, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 49 (1992)].
 [14] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions* (Wiley, New York, 1992), p. 328.
 [15] For a review, see, for example, R. W. Boyd and G. Grynberg, in *Contemporary Non Linear Optics*, edited by G. Agrawal and R. W. Boyd (Addison-Wesley, Reading, MA, 1992).
 [16] B. Lounis, P. Verkerk, C. Salomon, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg (unpublished).
 [17] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, in *Atom-Photon Interactions* (Ref. [14]), p. 384.
 [18] A. Heidmann, thèse de 3^e cycle, Paris, 1984 (unpublished).
 [19] J. Javanainen and S. Stenholm, *Appl. Phys.* **21**, 35 (1980).
 [20] A. R. Bogdan, M. C. Downer, and N. Bloembergen, *Opt. Lett.* **6**, 348 (1981).
 [21] G. Grynberg, M. Vallet, and M. Pinard, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 701 (1990).

- [22] M. Vallet, M. Pinard, and G. Grynberg, *Opt. Commun.* **87**, 340 (1992).
- [23] D. S. Chemla, D. A. B. Miller, P. W. Smith, A. C. Gosard, and W. Wiegmann, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-20**, 265 (1984); see also C. Weisbuch and B. Vinter, *Quantum Semiconductor Devices: Physics and Applications* (Academic, New York, 1991).
- [24] G. Grynberg, E. Le Bihan, and M. Pinard, *J. Phys. (Paris)* **47**, 1321 (1986).
- [25] M. T. Gruneisen, K. R. MacDonald, and R. W. Boyd, *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 123 (1988).
- [26] The interest in adiabatic states to help understand two-wave mixing resonances has been considered by G. Grynberg and P. Berman, *Phys. Rev. A* **39**, 4016 (1989) in the case of two-level atoms.
- [27] D. Grison, B. Lounis, C. Salomon, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg, *Europhys. Lett.* **15**, 149 (1991).
- [28] B. Sheehy, S. Q. Chang, P. Van der Sraten, S. Hatamian, and H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 858 (1990).
- [29] A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2112 (1989).

CHAPITRE IV

SPECTROSCOPIE DES MÉLASSES OPTIQUES 1D $\sigma^+ - \sigma^-$



*“Le but de la science est de prévoir et non,
comme on l’a dit souvent, de comprendre.”*

Pierre Lecomte du Noüy (1883-1947). L’homme et sa destinée.

1. Introduction

Le but de ce chapitre est de donner une interprétation physique aussi complète que possible des spectres de transmission d'une onde sonde à travers une mélasse optique 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ [Lou92]. La méthode théorique de calcul des spectres ayant fait l'objet d'une publication ([Cou93] jointe en annexe IV.B), nous ne reviendrons pas en détail sur celle-ci, et nous en indiquerons seulement le principe. Comme au chapitre précédent, nous nous intéresserons ici exclusivement au cas des spectres de transmission. On trouvera une discussion des spectres de conjugaison de phase dans les Réfs [Cou93] et [Lou93b].

Nous débuterons par le résumé des principaux résultats de la théorie du refroidissement 1D $\sigma^+ - \sigma^-$, en considérant le cas modèle d'une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ [Coh92] (§IV.2). Nous rappellerons notamment l'origine de la force de friction responsable du ralentissement ainsi que les caractéristiques de l'état fondamental de l'atome (existence de différences de populations et de déplacements lumineux), qui seront indispensables pour la suite de notre étude.

Après avoir rappelé et commenté les résultats expérimentaux obtenus dans une mélasse optique 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ d'atomes de césium (§IV.3), nous aborderons l'interprétation physique des spectres de transmission en considérant le cas d'une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$. Nous caractériserons tout d'abord les propriétés dynamiques de la mélasse en utilisant le découplage adiabatique des degrés de liberté atomiques internes et externes (§IV.4). Nous montrerons en particulier que le taux de relaxation de la distribution d'impulsion est proportionnel au coefficient de friction de la force de refroidissement. Nous discuterons ensuite les phénomènes physiques impliqués dans les résonances Raman et Rayleigh stimulées des spectres de transmission, en distinguant les deux géométries expérimentales où la polarisation circulaire de la sonde est soit parallèle (\parallel), soit orthogonale (\perp) à celle de l'onde pompe se propageant dans la même direction qu'elle (§IV.5). Nous décrirons les processus Raman stimulés entre sous-niveaux Zeeman ayant des populations et des déplacements lumineux différents en montrant leur analogie avec les processus de résonance magnétique. Nous montrerons que la résonance Rayleigh stimulée observée dans la configuration de polarisation \parallel est liée à une modification de la distribution d'impulsion du milieu par l'onde sonde, et que sa largeur est proportionnelle au coefficient de friction de la force de ralentissement. Dans la configuration de polarisation \perp , nous prédirens l'existence d'une résonance Raman induite par le recul de largeur proportionnelle à la largeur Doppler de la mélasse et nous discuterons quelques raisons pour lesquelles cette résonance a pu

échapper à nos premières observations expérimentales. Nous concluerons ce chapitre en rappelant le principe du modèle utilisé pour le calcul des spectres de transmission (§IV.6).

2. Rappels : le mécanisme de refroidissement $\sigma^+ - \sigma^-$ [Coh92]

Nous rappelons ici les principaux résultats de la théorie du refroidissement $\sigma^+ - \sigma^-$, qui sont indispensables pour aborder l'interprétation physique des spectres de transmission de l'onde sonde.

2.1. Hamiltonien effectif et taux de pompage optique

Nous considérons une mélasse 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ dans le cas d'une transition atomique fermée entre un niveau fondamental de moment cinétique $J_g = 1$ et un niveau excité de moment cinétique $J_e = 2$ [Dal89], [Coh92]. Cette mélasse est obtenue au moyen de deux faisceaux pompes se propageant selon les directions $+z$ et $-z$, polarisés circulairement σ^+ et σ^- , et ayant même fréquence ω et même amplitude E_0 . Pour un choix convenable de phase, le champ électrique total au point z est donc donné par :

$$\vec{E}_0(z) = \sqrt{2}E_0(\vec{e}_x \sin(kz) + \vec{e}_y \cos(kz))e^{-i\omega t} + \text{c. c.} \quad (\text{IV.2.1-1})$$

Son amplitude $\sqrt{2}E_0$ est indépendante de z , et sa polarisation linéaire tourne d'un angle $-kz$ autour de Oz lorsque z varie, formant ainsi une hélice de pas λ (Fig. IV.2.1-1(a)).

Le couplage atome-rayonnement est caractérisé par le désaccord à résonance $\Delta = \omega - \omega_A$ entre les ondes pompes (ω) et la fréquence atomique (ω_A) (on se placera toujours dans la situation $\Delta < 0$, le refroidissement ne se produisant que du côté rouge de la résonance), ainsi que par le paramètre de saturation de la transition atomique par une seule onde pompe :

$$s_0 = \frac{\Omega^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (\text{IV.2.1-2})$$

[Coh92] C. Cohen-Tannoudji, in *Fundamental Systems in Quantum Optics*, Les Houches, session LIII, édité sous la direction scientifique de J. Dalibard, J.-M. Raimond et J. Zinn-Justin (Elsevier Science Publisher B. V., 1992), p. 1.

où $\Omega = -2DE_0/\hbar$ est la fréquence de Rabi résonnante qui caractérise le couplage entre le dipôle atomique D et une onde pompe, et où Γ est la largeur naturelle du niveau excité. Nous nous placerons dans toute la suite à la limite des faibles saturations :

$$s_0 \ll 1 \quad (\text{IV.2.1-3})$$

et des grands désaccords :

$$|\Delta| \gg \Gamma \quad (\text{IV.2.1-4})$$

qui correspond à l'optimum de refroidissement [Dal89].

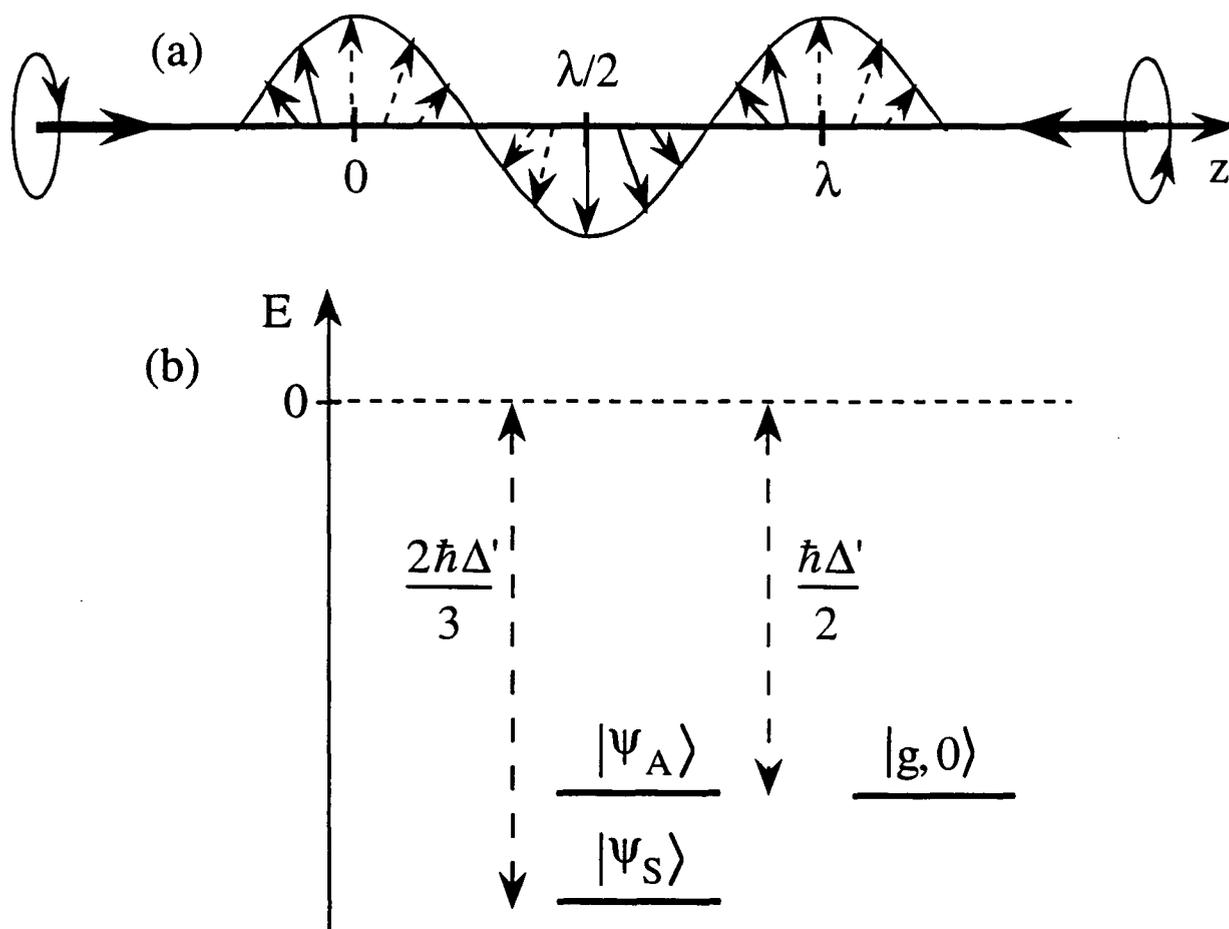


FIG. IV.2.1-1 : Polarisation du champ de refroidissement d'une mélasse 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ et déplacements lumineux des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$. (a) Le champ électrique total résulte de la superposition de deux ondes se propageant en sens opposés, de même intensité, de même fréquence, et ayant des polarisations circulaires orthogonales. La polarisation de ce champ est linéaire en tout point de l'espace, mais sa direction change le long de Oz et forme une hélice. (b) L'ellipticité et l'amplitude du champ de refroidissement étant constantes, les déplacements lumineux des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental sont indépendants de l'espace.

Comme rappelé au §R.3, ces deux conditions permettent l'élimination adiabatique du niveau excité ainsi que des cohérences optiques, et conduisent à une description des propriétés dynamiques du système atomique au moyen de l'équation du pompage optique (R.3.1-7) [Rq.IV-1]. Comme discuté au §R.3, on distingue dans cette équation deux types d'effets :

(i) D'une part l'effet de déplacement lumineux des sous-niveaux Zeeman du fondamental $|g, \mu\rangle$ (μ étant le nombre quantique magnétique, avec Oz pris comme axe de quantification), caractérisé par un Hamiltonien effectif de la forme :

$$H_{\text{eff}}^{(0)} = \frac{\hbar\Delta'}{2}|g, 0\rangle\langle g, 0| + \frac{\hbar\Delta'}{2}|\psi_A(z)\rangle\langle\psi_A(z)| + \frac{2\hbar\Delta'}{3}|\psi_S(z)\rangle\langle\psi_S(z)| \quad (\text{IV.2.1-5})$$

avec
$$|\psi_A(z)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g, 1\rangle e^{ikz} - |g, -1\rangle e^{-ikz}) \quad (\text{IV.2.1-6})$$

$$|\psi_S(z)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g, 1\rangle e^{ikz} + |g, -1\rangle e^{-ikz}) \quad (\text{IV.2.1-7})$$

et
$$\Delta' = \Delta s_0 \quad (\text{IV.2.1-8})$$

L'expression (IV.2.1-5) montre clairement que les déplacements lumineux sont indépendants de z , bien que les états propres de $H_{\text{eff}}^{(0)}$ dépendent de z (Fig. IV.2.1-1(b)).

(ii) D'autre part l'effet de pompage optique, qui décrit les transitions réelles par cycles d'absorption-émission spontanée entre les niveaux $|g, 0\rangle$, $|\psi_A(z)\rangle$ et $|\psi_S(z)\rangle$, et se traduit par un élargissement de ces niveaux. Cet effet est caractérisé par le taux de diffusion de la lumière [Rq.IV-2] :

$$\Gamma' = \Gamma s_0 \quad (\text{IV.2.1-9})$$

Les taux de départ des niveaux $|g, 0\rangle$, $|\psi_A(z)\rangle$, $|\psi_S(z)\rangle$ sont alors donnés par $\Gamma'/2$, $\Gamma'/2$, et $2\Gamma'/3$.

[Rq.IV-1] On se place ici dans le cadre d'un traitement semi-classique où les degrés de liberté externes de l'atome ne sont pas quantifiés.

[Rq.IV-2] Il est important de noter la différence de définitions de Γ' et de Δ' par rapport au chapitre II. Les notations présentes sont mieux adaptées au cas des mélasses 1D qui comportent deux ondes pompes (et non plus une seule comme au chapitre II).

2.2. État interne d'un atome au repos

Nous considérons le cas d'un atome au repos au point z . Il est aisé de montrer qu'en raison de la compétition entre les processus de départ et d'arrivée par pompage optique, la matrice densité stationnaire d'un tel atome est diagonale dans la base $\{|g, 0\rangle, |\psi_A(z)\rangle, |\psi_S(z)\rangle\}$ avec les populations :

$$\begin{aligned}\pi_0^{(0)} = \pi_A^{(0)} &= \frac{4}{17} \\ \pi_S^{(0)} &= \frac{9}{17}\end{aligned}\tag{IV.2.2-1}$$

Dans l'état stationnaire, un atome au repos possède donc des sous-niveaux Zeeman ayant des populations et des déplacements lumineux différents, l'état $|\psi_S(z)\rangle$ d'énergie la plus basse (voir Fig. IV.2.1-1) étant le plus peuplé.

2.3. État interne d'un atome en mouvement

Nous considérons à présent le cas d'un atome de vitesse v ($z = vt$), et nous négligeons la variation de vitesse atomique durant l'intervalle de temps nécessaire à l'état interne pour atteindre sa valeur stationnaire. L'expression (IV.2.1-1) montre alors que dans le référentiel du centre de masse atomique, l'atome voit un champ dont la polarisation linéaire tourne autour de Oz à la fréquence $-kv$. Il est donc particulièrement commode de se placer dans un référentiel *tournant* attaché au référentiel du centre de masse atomique, dans lequel le champ laser conserve une polarisation linéaire *fixe*. Le changement de référentiel s'effectue au moyen d'une transformation unitaire \mathcal{V} [Rq.IV-3] :

$$\mathcal{V} = e^{ikzJ_z/\hbar}\tag{IV.2.3-1}$$

où J_z désigne l'opérateur moment cinétique le long de la direction z , qui n'est autre que le générateur du groupe des rotations autour de Oz [Rq.IV-4]. Dans le référentiel tournant, la matrice densité atomique prend la forme :

$$\tilde{\sigma}^{(0)} = \mathcal{V}^\dagger \sigma^{(0)} \mathcal{V}\tag{IV.2.3-2}$$

[Rq.IV-3] La notation \mathcal{V} rappelle la transformation géométrique correspondante, qui est un vissage d'axe Oz et d'angle $-kz$.

[Rq.IV-4] Lorsque les degrés de liberté atomiques externes sont quantifiés, il convient de remplacer le scalaire z par l'opérateur position Z dans l'expression de \mathcal{V} .

Notons que cette transformation n'affecte pas les populations.

Du fait que l'opérateur unitaire (IV.2.3-1) possède une dépendance explicite en temps (en raison du mouvement atomique), le passage dans le référentiel tournant fait apparaître un nouvel Hamiltonien effectif dans l'équation du pompage optique :

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(0)} = H_{\text{eff}}^{(0)}(z=0) + V_{\text{rot}} \quad (\text{IV.2.3-3})$$

avec
$$V_{\text{rot}} = i\hbar \frac{\partial \mathcal{V}^\dagger}{\partial t} \mathcal{V} = kv J_z \quad (\text{IV.2.3-4})$$

Le Hamiltonien (IV.2.3-3) diffère du Hamiltonien (IV.2.1-5) par un opérateur décrivant l'interaction des atomes avec un champ magnétique statique fictif longitudinal, de fréquence de Larmor égale à kv . On trouve ainsi que l'état d'un atome en mouvement se réduit à celui d'un atome au repos soumis à l'action additionnelle d'un champ magnétique statique longitudinal. Ceci nous fournit alors un moyen d'évaluer l'effet du mouvement sur l'état interne de l'atome.

Nous notons tout d'abord que le seul élément de matrice non nul de V_{rot} dans la base $\{|g,0\rangle, |\psi_A(0)\rangle, |\psi_S(0)\rangle\}$ est :

$$\langle \psi_S | V_{\text{rot}} | \psi_A \rangle = \hbar kv \quad (\text{IV.2.3-5})$$

Dans la limite $kv \ll |\Delta'|$ où le couplage motionnel est petit devant la différence d'énergie entre les états $|\psi_S\rangle$ et $|\psi_A\rangle$ caractérisant l'état de l'atome au repos, il est aisé d'évaluer l'effet du mouvement atomique au moyen de la théorie des perturbations. On trouve ainsi qu'au premier ordre en kv/Δ' , le seul effet de V_{rot} est de modifier les états propres de $H_{\text{eff}}^{(0)}$ selon :

$$\begin{aligned} |\tilde{\psi}_S\rangle &= |\psi_S\rangle + \frac{6kv}{\Delta'} |\psi_A\rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\left(1 + \frac{6kv}{\Delta'}\right) |g,1\rangle + \left(1 - \frac{6kv}{\Delta'}\right) |g,-1\rangle \right] \end{aligned} \quad (\text{IV.2.3-6.a})$$

$$\begin{aligned} |\tilde{\psi}_A\rangle &= |\psi_A\rangle - \frac{6kv}{\Delta'} |\psi_S\rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\left(1 - \frac{6kv}{\Delta'}\right) |g,1\rangle - \left(1 + \frac{6kv}{\Delta'}\right) |g,-1\rangle \right] \end{aligned} \quad (\text{IV.2.3-6.b})$$

On remarque alors que tandis que $|\psi_S\rangle$ et $|\psi_A\rangle$ contiennent la même "quantité" d'états $|g,1\rangle$ et $|g,-1\rangle$, il n'en est plus de même pour les états perturbés $|\tilde{\psi}_S\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle$. Au premier ordre en kv/Δ' , le mouvement de l'atome induit donc une modification de son état interne caractérisée par

la création d'une orientation moyenne $\langle J_z(v) \rangle^{(0)}$ dans l'état fondamental, de l'ordre de $\hbar kv/\Delta'$. Plus précisément, on trouve :

$$\langle J_z(v) \rangle^{(0)} = -\frac{60}{17} \hbar \frac{kv}{|\Delta'|} \quad (\text{IV.2.3-7})$$

En revanche, les énergies propres du Hamiltonien ne sont pas modifiées au premier ordre en kv/Δ' par le mouvement atomique.

2.4. Force et coefficient de diffusion en impulsion

a. Force de refroidissement

Il est possible de distinguer deux contributions d'origines physiques différentes à la force de refroidissement. La première, ou force réactive, rend compte des processus de redistribution de photons entre les deux ondes de refroidissement se propageant en sens opposés, qui s'accompagnent de transferts d'impulsion de $\pm 2\hbar k$ vers l'atome. La seconde, ou force dissipative, décrit le phénomène de pression de radiation exercée par les faisceaux lasers sur l'atome. Il est possible de montrer [Coh92] que dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$, la partie dissipative de la force est plus grande d'un facteur cinq que la partie réactive. Cette propriété est due au fait que les processus de redistribution sont limités à un nombre fini de cycles dans la configuration $\sigma^+ - \sigma^-$ en raison de la parfaite corrélation entre le moment angulaire et l'impulsion des photons pompes. On peut donc considérer qu'en présence des seules ondes pompes, la force de refroidissement est essentiellement due au déséquilibre des pressions de radiation exercées par les faisceaux lasers sur l'atome [Rq.IV-5]. Ce déséquilibre, lié à l'existence d'une orientation de l'état fondamental de l'atome induite par le mouvement, constitue un exemple d'une modification *sélective en vitesse* de l'état atomique interne. On peut montrer plus précisément que la force de refroidissement prend la forme :

$$F^{(0)} = k \frac{\Gamma'}{2} \langle J_z \rangle^{(0)} \quad (\text{IV.2.4-1})$$

[Rq.IV-5] On montre que la force réactive s'exprime en termes des mêmes observables que la force dissipative, ce qui permet de la décrire formellement par une modification de l'intensité de la force de pression de radiation.

Afin de travailler avec des quantités sans dimension plus commodes à manipuler, nous utiliserons par la suite la quantité $u = kv/|\Delta|$ plutôt que la vitesse atomique, et nous exprimerons le désaccord à résonance en unités Γ , ainsi que la force de refroidissement en unités $\hbar k\Gamma$. On aura ainsi :

$$F^{(0)}(v) = \hbar k\Gamma \mathcal{F}^{(0)}\left(u = \frac{kv}{|\Delta|}, \frac{\Delta}{\Gamma}\right) \quad (\text{IV.2.4-2})$$

$\mathcal{F}^{(0)}$ est représenté sur la Fig. IV.2.4-1(a) en fonction de u pour un désaccord à résonance $\Delta = -5\Gamma$. On distingue sur cette figure deux régimes différents. Premièrement, dans la limite $u \ll 1$ où le terme dominant du Hamiltonien effectif (IV.2.3-3) correspond à l'effet des déplacements lumineux, l'orientation atomique induite par le mouvement est proportionnelle à la vitesse de l'atome (voir §IV.2.3), de telle sorte que la force de refroidissement prend la forme d'une force de friction pure $F^{(0)} = -\alpha v$, de coefficient de friction :

$$\alpha = \frac{120}{17} \hbar k^2 \frac{|\Delta|\Gamma}{4\Delta^2 + 5\Gamma^2} \quad (\text{IV.2.4-3})$$

Notons que cette formule résulte directement des Eqs (IV.2.3-7) et (IV.2.4-1). Elle montre que α est indépendant de l'intensité des lasers pompes et s'exprime à la limite $|\Delta| \gg \Gamma$ qui nous intéresse ici sous la forme :

$$\alpha \approx \frac{30}{17} \hbar k^2 \frac{\Gamma}{|\Delta|} \quad (\text{IV.2.4-4})$$

A la limite $u \gg 1$ où le terme dominant du Hamiltonien effectif (IV.2.3-3) correspond à l'effet du champ magnétique motionnel, et où les populations des niveaux $|g, 1\rangle$ et $|g, -1\rangle$ tendent à s'égaliser, les pressions de radiation des ondes lasers s'équilibrent et la force de refroidissement sub-Doppler tend vers zéro (notons toutefois que le mécanisme de ralentissement Doppler, qui n'est pas pris en compte dans notre modèle, conduit à une force de friction résiduelle).

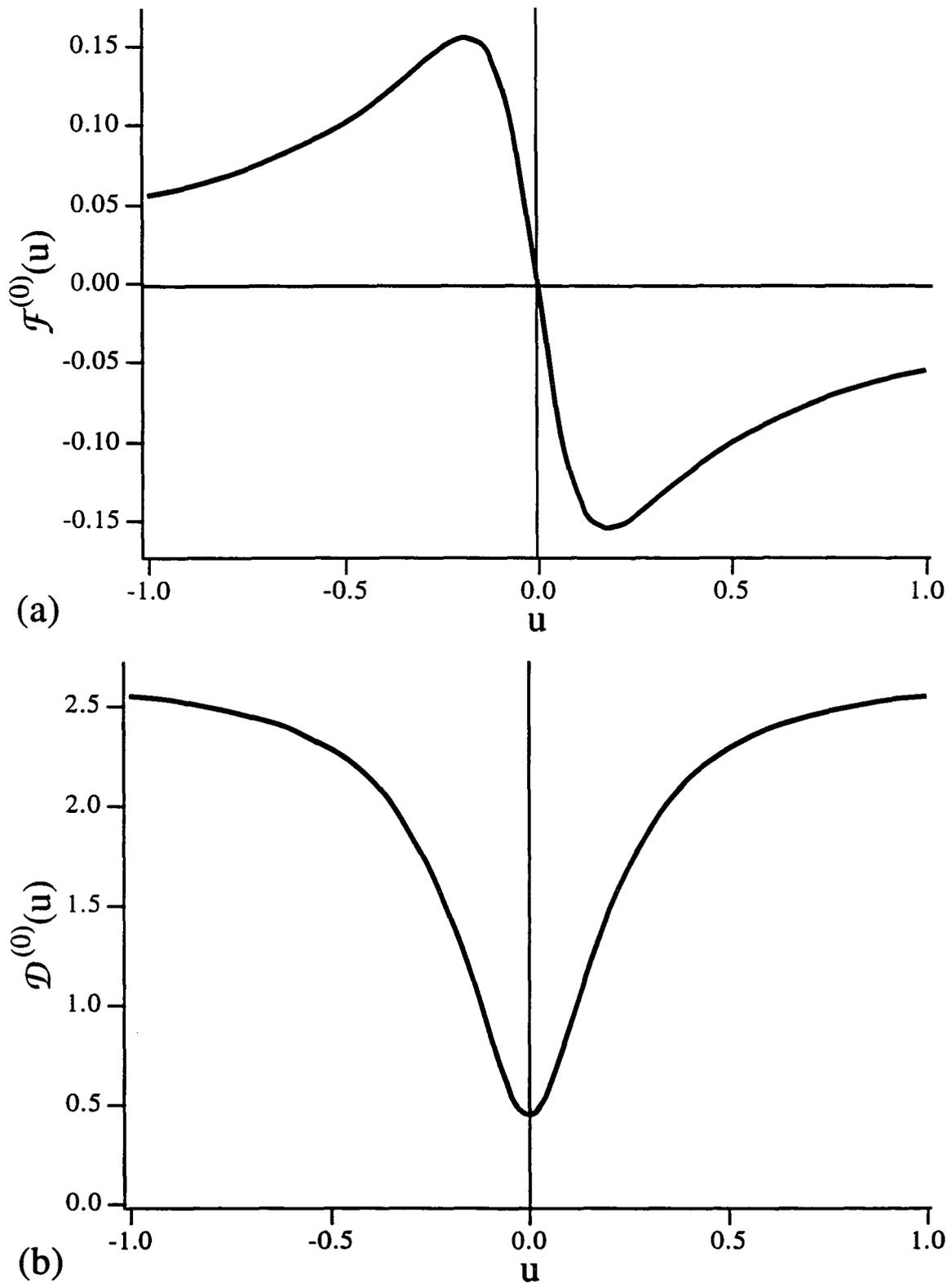


FIG. IV.2.4-1 : Force de refroidissement $\mathcal{F}^{(0)}$ et coefficient de diffusion en impulsion $\mathcal{D}^{(0)}$ sans dimension en fonction de u , pour un désaccord à résonance $\Delta = -5\Gamma$. (a) La force de refroidissement tend vers 0 à la limite $u \gg 1$, et correspond à une force de friction pure à la limite $u \ll 1$. (b) Le coefficient de diffusion en impulsion est plus important à grande qu'à faible vitesse.

b. Coefficient de diffusion en impulsion

Le calcul du coefficient de diffusion en impulsion est un peu plus délicat que celui de la force de refroidissement. Une possibilité consiste à travailler en représentation de Heisenberg, et à déduire le coefficient de diffusion à partir de la fonction d'auto-corrélation temporelle de la force. Il est en fait plus commode d'utiliser la représentation de Schrödinger, qui offre un moyen systématique de calculer simultanément la force de refroidissement et le coefficient de diffusion en impulsion. Une telle approche est décrite en annexe de la Réf. [Cou93] (voir annexe B.IV). De même que pour la force de refroidissement, on exprimera le coefficient de diffusion au moyen d'une quantité sans dimension $\mathcal{D}^{(0)}$ définie par :

$$D^{(0)}(v) = (\hbar k)^2 \Gamma' \mathcal{D}^{(0)}\left(u = \frac{kv}{|\Delta|}, \frac{\Delta}{\Gamma}\right) \quad (\text{IV.2.4-5})$$

$\mathcal{D}^{(0)}$ est représenté sur la Fig. IV.2.4-1(b) en fonction de u pour un désaccord à résonance $\Delta = -5 \Gamma$. On remarquera que le coefficient de diffusion en impulsion dépend notablement de la vitesse atomique, et qu'il existe en particulier une différence entre le cas d'un atome au repos et d'un atome de grande vitesse [Cas90]. On peut montrer que les deux valeurs limites correspondantes sont [Cas92] :

$$\mathcal{D}^{(0)}\left(0, \frac{\Delta}{\Gamma}\right) = \frac{36}{17(1 + 4\Delta^2/5\Gamma^2)} + \frac{29}{85} \quad (\text{IV.2.4-6})$$

$$\lim_{u \rightarrow \infty} \mathcal{D}^{(0)}\left(u, \frac{\Delta}{\Gamma}\right) = \frac{1171}{440} \quad (\text{IV.2.4-7})$$

3. Résultats expérimentaux [Lou93c]

Nous rappelons dans ce paragraphe les caractéristiques des spectres de transmission obtenus expérimentalement dans une mélasse optique 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ d'atomes de césium (transition atomique $J_g=4 \rightarrow J_e=5$) [Rq.IV-6]. La méthode expérimentale d'enregistrement des spectres est en

[Cas90] Y. Castin et K. Mølmer, J. Phys. B 23, 4101 (1990).

[Rq.IV-6] Pour plus de détails concernant les résultats expérimentaux, voir la Réf. [Lou92] jointe en annexe A.IV.

tout point identique à celle décrite au §III.4, la seule différence résidant dans le choix de polarisation des ondes pompes et sonde.

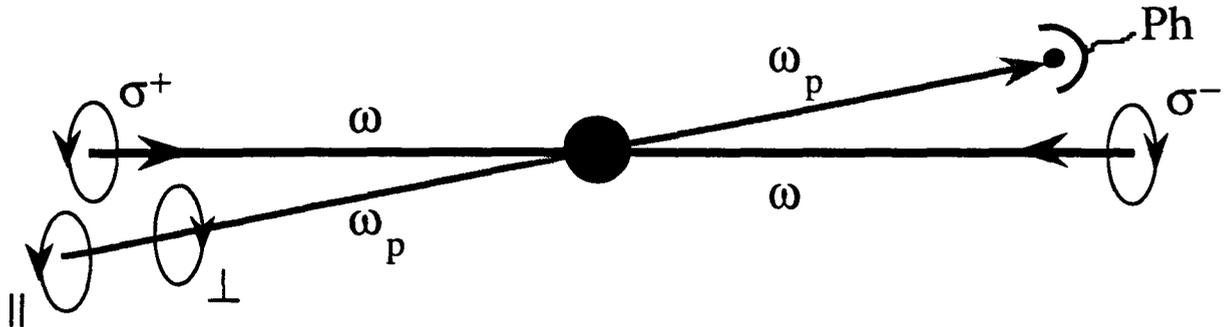


FIG. IV.3-1 : Schéma d'une expérience de spectroscopie pompe-sonde dans une mélasse 1D $\sigma^+ - \sigma^-$. Deux faisceaux lasers de fréquence ω et de polarisations circulaires orthogonales se propagent en sens opposés à travers un nuage d'atomes froids issu d'un piège magnéto-optique, réalisant ainsi (de manière transitoire) une mélasse optique 1D $\sigma^+ - \sigma^-$. Un faisceau sonde de faible intensité et de fréquence variable $\omega_p \approx \omega$ interagit également avec le milieu atomique. Le spectre de transmission est enregistré par mesure de l'intensité de la sonde transmise en fonction de ω_p à l'aide d'une photodiode Ph. Il est étudié pour deux configurations de polarisation circulaire de l'onde sonde, selon que celle-ci est parallèle (||) ou orthogonale (\perp) à la polarisation du faisceau pompe se propageant dans la même sens qu'elle. L'angle entre les ondes sonde et pompes, de l'ordre de 3° , a été exagéré ici pour la clarté de la figure.

Comme dans le cas des mélasses lin \perp lin, les spectres de transmission sont étudiés pour deux géométries de polarisation du faisceau sonde. Nous y ferons référence par la suite sous l'appellation de configurations de polarisation || ou \perp , selon que la polarisation circulaire de l'onde sonde est parallèle ou orthogonale à celle de l'onde pompe se propageant dans la même direction qu'elle (Fig. IV.3-1). Nous avons représenté sur la Fig. IV.3-2 l'allure des spectres de transmission dans chacune de ces configurations de polarisation, et rassemblé l'ensemble des paramètres caractéristiques de l'expérience dans le Tableau IV.3-1.

La comparaison des Figs IV.3-2(a) (cas ||) et IV.3-2(b) (cas \perp) appelle les remarques suivantes :

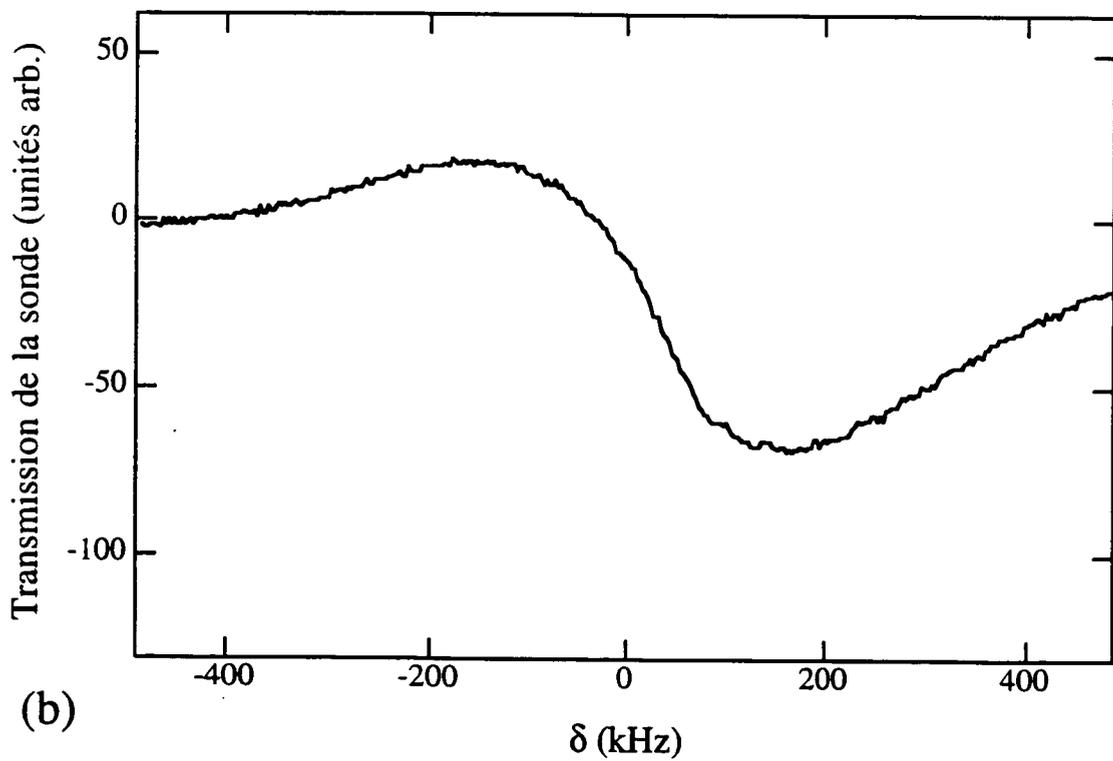
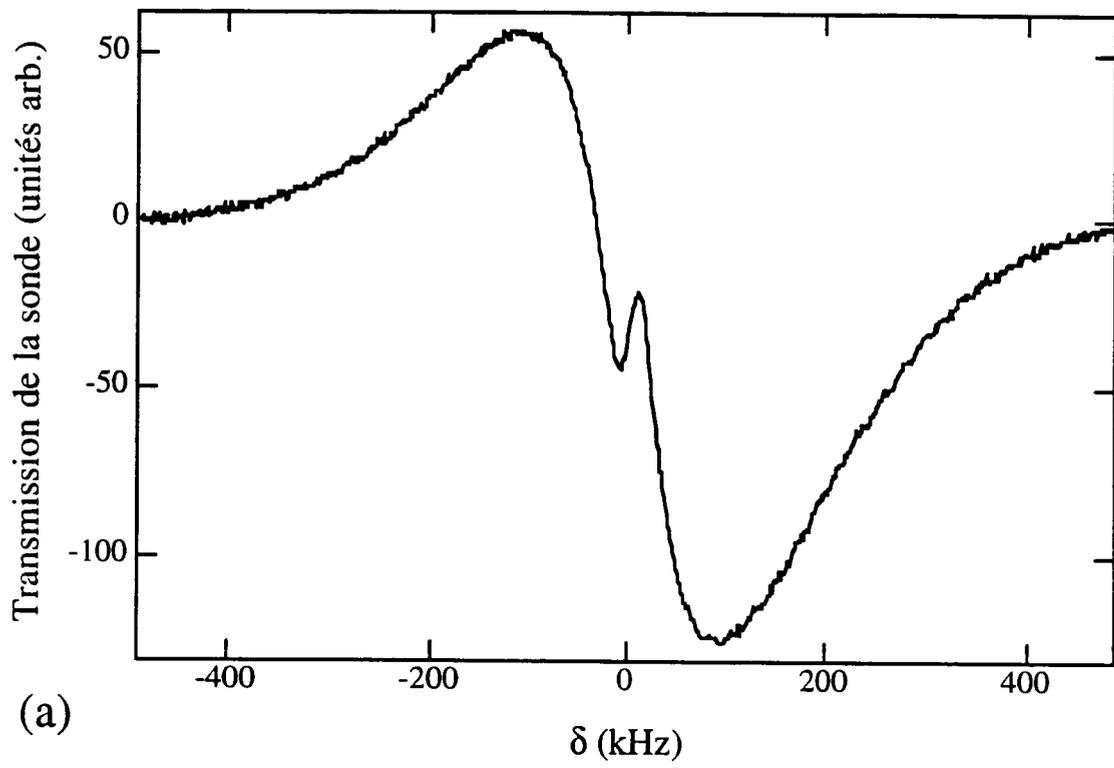
- Les spectres de transmission de la sonde se caractérisent par la présence de résonances latérales en amplification et en absorption de largeur typique égale au taux de diffusion de la lumière Γ' . Ces résonances correspondent à des processus Raman stimulés entre les sous-niveaux Zeeman ayant des populations et des déplacements lumineux différents, analogues à ceux considérés au §I.4.2. Les résonances Raman sont toutefois sensiblement moins intenses et plus larges (130 kHz de différence) dans la configuration de polarisation \perp que dans le cas ||.

- La partie centrale des spectres de transmission diffère fortement selon la configuration de polarisation de l'onde sonde. Si aucune structure n'est visible dans le cas \perp , le spectre de la Fig. IV.3-2(a) fait clairement apparaître une structure de forme dispersive et de demi-largeur de l'ordre de 15 kHz. Cette largeur apparaît comme indépendante de l'intensité des lasers pompes et varie comme l'inverse du désaccord à résonance avec une bonne précision (voir [Lou92]). Comme nous le montrerons au §IV.4, cette résonance est associée à un processus Rayleigh stimulé impliquant la modulation temporelle de la distribution d'impulsion atomique par l'onde sonde.

$E_R \approx 2 \text{ kHz}$	Energie de recul de l'atome de césium (en unités de fréquence)
$\Gamma \approx 5.3 \text{ MHz}$	Largeur naturelle du niveau excité
$\Delta \approx -5 \Gamma$	Désaccord à résonance des ondes pompes
$I_0 \approx 10 \text{ mW/cm}^2$	Intensité des lasers pompes (correspondant à une fréquence de Rabi résonnante $\Omega \approx 2 \Gamma$)
$s_0 \approx 1/10$	Paramètre de saturation de la transition atomique par une onde pompe
$\Gamma' = \Gamma s_0 \approx 500 \text{ kHz}$	Taux caractéristique de diffusion de la lumière par les atomes
$\alpha/M \approx 15 \text{ kHz}$	Rapport du coefficient de friction de la force de refroidissement et de la masse atomique (estimation théorique)
$k\bar{v} \approx 35 \text{ kHz}$	Largeur Doppler de la mélasse (estimation théorique)

Tableau IV.3-1 : Paramètres expérimentaux caractéristiques des spectres de la Fig. IV.3-1.

FIG. IV.3-2 : Spectre de transmission expérimental obtenu pour un désaccord à résonance $\Delta = -5\Gamma$, et une intensité des ondes pompes $I_0 = 10 \text{ mW/cm}^2$. (a) Configuration de polarisation \parallel . On distingue la présence de résonances latérales en absorption et en amplification de largeur $\approx 200 \text{ kHz}$ et centrées en $\delta \approx \pm 100 \text{ kHz}$. Elles sont associées à des transitions Raman stimulées entre sous-niveaux Zeeman ayant des populations et des déplacements lumineux différents. Une structure Rayleigh de forme dispersive et de largeur de l'ordre de 30 kHz est également visible au centre du spectre. (b) Configuration de polarisation \perp . Les résonances Raman stimulées sont plus larges ($\approx 330 \text{ kHz}$) et moins intenses qu'en (a). Aucune structure centrale n'est visible.



4. Propriétés dynamiques de la mélasse optique

Comme nous l'avons montré aux chapitres II et III, les caractéristiques des spectres de transmission (nombre, largeur et position des résonances) dépendent des modes propres dynamiques du milieu excités par la sonde. Ainsi, deux étapes sont nécessaires dans l'étude des spectres. La première consiste à déterminer les différents modes et taux propres de relaxation décrivant le retour vers l'état stationnaire du milieu placé hors d'équilibre. La seconde consiste à évaluer, pour un choix donné des caractéristiques géométriques (polarisation, direction de propagation) de l'onde sonde, le sous-ensemble des modes dynamiques qui sont réellement excités.

Nous nous intéressons dans ce paragraphe à la première étape, en cherchant à caractériser à partir d'arguments physiques les propriétés dynamiques d'une mélasse optique 1D σ^+ - σ^- dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$. Dans un tel milieu, le temps d'évolution caractéristique des variables atomiques internes est très court devant celui des variables externes, si bien qu'il y a découplage du comportement dynamique de la mélasse entre modes relatifs aux degrés de liberté internes et externes de l'atome [Rq.IV-7]. Il est en effet possible de déterminer les propriétés dynamiques internes d'un atome en supposant son état externe fixe (car cet état reste inchangé pendant le temps de relaxation des variables internes), de même que l'on peut considérer séparément la dynamique des degrés de liberté externes de l'atome en éliminant adiabatiquement son état interne (on aboutit ainsi à une équation d'évolution de la distribution d'impulsion atomique du type équation de Fokker-Planck [Ber92]). Cette propriété va nous permettre d'évaluer séparément les taux caractéristiques de relaxation des observables impliquant les degrés de liberté internes ou les variables externes.

4.1. Taux de relaxation des variables internes

Nous cherchons ici à estimer les taux caractéristiques de relaxation des observables impliquant les degrés de liberté internes d'un atome d'impulsion bien définie. De telles observables jouent un rôle prépondérant lorsque la différence de fréquence entre pompes et sonde est grande devant le taux typique d'évolution des variables atomiques externes. C'est en particulier le cas des transitions Raman stimulées entre états $|\tilde{\psi}_S\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle$, qui se produisent pour une différence de

[Rq.IV-7] Ce résultat, largement valable dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$, est sujet à caution dans le cas des transitions de moment cinétique J_g élevé, où les temps d'évolution internes peuvent devenir plus longs que ceux des variables externes [Cas90]. Dans ce cas, seul un traitement quantique global incluant à la fois les degrés de liberté internes et externes de l'atome peut permettre de véritablement caractériser les propriétés dynamiques de la mélasse.

[Ber92] K. Berg-Sørensen, E. Bonderup, K. Mølmer et Y. Castin, J. Phys. B **25**, 4195 (1992).

fréquence entre sonde et pompes de l'ordre de $\pm\Delta'$ (voir §IV.5). Dans la mesure où aucun phénomène de localisation atomique ne se produit dans les mélasses $\sigma^+ - \sigma^-$ (le potentiel lumineux n'est pas modulé spatialement), nous nous attendons à ce que le taux caractéristique de relaxation des variables internes γ_{int} soit de l'ordre du taux de diffusion de la lumière :

$$\gamma_{\text{int}} \approx \Gamma' \quad (\text{IV.4.1-1})$$

Notons toutefois que les résonances impliquant les variables internes peuvent être également affectées par un phénomène d'élargissement Doppler inhomogène lié à la distribution d'impulsion des atomes de la mélasse [Rq.IV-8].

4.2. Taux de relaxation des variables externes

Nous considérons à présent les taux de relaxation des observables impliquant les degrés de liberté atomiques externes. Comme nous le verrons au §IV.5, ces observables sont à l'origine des structures centrales des spectres de transmission, où la différence de fréquence entre la sonde et les pompes est suffisamment faible pour que les degrés de liberté externes de l'atome soient excités. Nous nous plaçons ici au-dessus du seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler $\sigma^+ - \sigma^-$ où la distribution stationnaire d'impulsion atomique est dans le domaine de linéarité de la force de ralentissement, et nous cherchons à estimer les taux de relaxation des éléments de la matrice densité atomique entre états externes d'impulsion \vec{p} [Rq.IV-9]. Dans cette situation, il est possible d'approximer la force de refroidissement par une force de friction pure dont le coefficient de friction est donné par l'Eq. (IV.2.4-3).

Considérons tout d'abord le cas d'une modification de la distribution d'impulsion atomique. En vertu du principe fondamental de la dynamique :

$$\partial_t \vec{p} = F^{(0)} = -(\alpha/M) \vec{p} \quad (\text{IV.4.2-1})$$

nous nous attendons à ce qu'une telle modification relaxe avec un taux de l'ordre de α/M .

Envisageons à présent le cas d'une observable faisant intervenir des cohérences entre états d'impulsions différentes. Ces cohérences sont associées aux modulations spatiales de la densité atomique, comme le montre la relation :

[Rq.IV-8] Cet élargissement est néanmoins souvent petit devant Γ' .

[Rq.IV-9] Notons que cette impulsion, valeur propre de l'opérateur impulsion \vec{P} dans le référentiel tournant, ne correspond pas à la véritable impulsion de l'atome dans le référentiel du laboratoire, qui est décrite par l'opérateur $\vec{P} + k\vec{J}_z$.

$$\langle z|\tilde{\sigma}|z\rangle = \frac{1}{2\pi\hbar} \int d\tilde{p} d\tilde{p}' e^{i(\tilde{p}-\tilde{p}')z/\hbar} \langle \tilde{p}|\tilde{\sigma}|\tilde{p}'\rangle \quad (\text{IV.4.2-2})$$

Il nous faut donc estimer le taux de relaxation des modulations de densité. Les populations des états externes d'impulsion bien définie ayant une durée de vie de l'ordre de M/α , nous nous attendons déjà à ce que le taux de relaxation d'une telle modulation soit au moins de l'ordre de α/M . Mais la relaxation peut également faire intervenir le phénomène de diffusion spatiale. Le pas élémentaire de cette diffusion est égal à $\bar{v}(M/\alpha)$, où \bar{v} est la valeur quadratique moyenne de la vitesse atomique. Il correspond à la distance parcourue par un atome avant que sa vitesse ne change de façon appréciable sous l'action de la force de friction (α/M est le taux de relaxation de la vitesse atomique). Le temps moyen écoulé entre chaque pas étant égal à M/α , le coefficient de diffusion spatial est donné par :

$$D_z^{(0)} = \frac{\bar{v}^2}{2\alpha/M} \quad (\text{IV.4.2-3})$$

On peut donc évaluer le taux de relaxation par diffusion spatiale d'une modulation de densité de vecteur d'onde κ à [Rq.IV-10] :

$$\gamma_{D_z} = \frac{\kappa^2 \bar{v}^2}{\alpha/M} \quad (\text{IV.4.2-4})$$

Il reste à présent à estimer si la diffusion spatiale joue véritablement un rôle dans la relaxation de la modulation de densité. Il faut donc s'assurer que le pas élémentaire de la marche au hasard est beaucoup plus petit que la période spatiale de la modulation de densité. On peut exprimer cette condition sous la forme :

$$\kappa \bar{v} \ll \alpha/M \quad (\text{IV.4.2-5})$$

qui signifie également que l'élargissement Doppler est beaucoup plus faible que le taux de relaxation de la vitesse atomique. On peut donc distinguer deux cas limites :

(i) Si $\kappa \bar{v} \ll \alpha/M$, la diffusion spatiale participe réellement à la relaxation de la modulation de densité avec le taux $\gamma_{D_z} \ll \alpha/M$, de telle sorte que le mécanisme de relaxation prépondérant est lié à l'amortissement de la vitesse par la force de friction. La condition $\kappa \bar{v} \ll \alpha/M$ exprimant que la largeur Doppler inhomogène est plus petite que α/M , on s'attend en outre à ce que les

[Rq.IV-10] Dans un problème rigoureusement unidimensionnel, le seul vecteur d'onde possible est $\kappa = 2k$. Nous retenons ici la notation κ afin d'inclure la cas où le faisceau sonde fait un petit angle non nul avec les pompes (cas expérimental).

résonances Rayleigh stimulées aient une largeur de l'ordre de α/M , et qu'elles permettent donc de mesurer expérimentalement le coefficient de friction de la force de refroidissement. C'est ce que nous confirmerons par la suite.

(ii) Si $\kappa\bar{v} \gg \alpha/M$, la diffusion spatiale n'est *pas* impliquée dans la relaxation de la modulation de densité, qui s'amortit alors uniquement par étalement au cours du temps sous l'effet de la distribution de vitesse du milieu. On s'attend dans ce cas à observer un élargissement Doppler inhomogène des résonances, car la largeur Doppler $\kappa\bar{v}$ est plus grande que l'élargissement dû à l'amortissement de la vitesse atomique. Ce résultat laisse entrevoir la possibilité de déduire la température de mélasse à partir d'une largeur de résonance. Nous montrerons effectivement au §IV.5 qu'il peut apparaître sur les spectres de transmission une résonance Raman induite par le recul, dont la largeur donne accès à la température du milieu (voir §I.4.3).

5. Analyse physique des spectres de transmission

Les propriétés dynamiques de la mélasse 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ étant caractérisées, nous abordons à présent l'étude proprement dite des spectres de transmission, en cherchant à identifier les mécanismes d'interaction de l'onde sonde avec le milieu. Comme nous l'avons mentionné au §IV.4, une connaissance précise de cette interaction est essentielle pour l'interprétation des spectres, car elle permet d'identifier les modes dynamiques excités par l'onde sonde, et par suite les caractéristiques (position, largeur) des résonances. Notre démarche sera la suivante. Dans un premier temps, nous identifierons les observables excitées par l'onde sonde dans chacune des configurations de polarisation \parallel et \perp (§IV.5.1). L'utilisation des résultats du §IV.4 permettra alors de déterminer les largeurs de résonances susceptibles d'apparaître sur les spectres. Nous reviendrons ensuite plus précisément sur les mécanismes de modification de l'état atomique par l'onde sonde, en distinguant les géométries de polarisation \parallel (§IV.5.2) et \perp (§IV.5.3).

Notre but étant ici de mettre l'accent sur les phénomènes physiques impliqués, nous ne chercherons pas à justifier en détail toutes les étapes du raisonnement permettant d'interpréter les spectres. Pour une approche plus rigoureuse, on se reportera au §IV.6 ainsi qu'à l'article [Cou93] joint en annexe B.IV.

5.1. Observables impliquées dans la réponse du milieu à l'excitation de la sonde

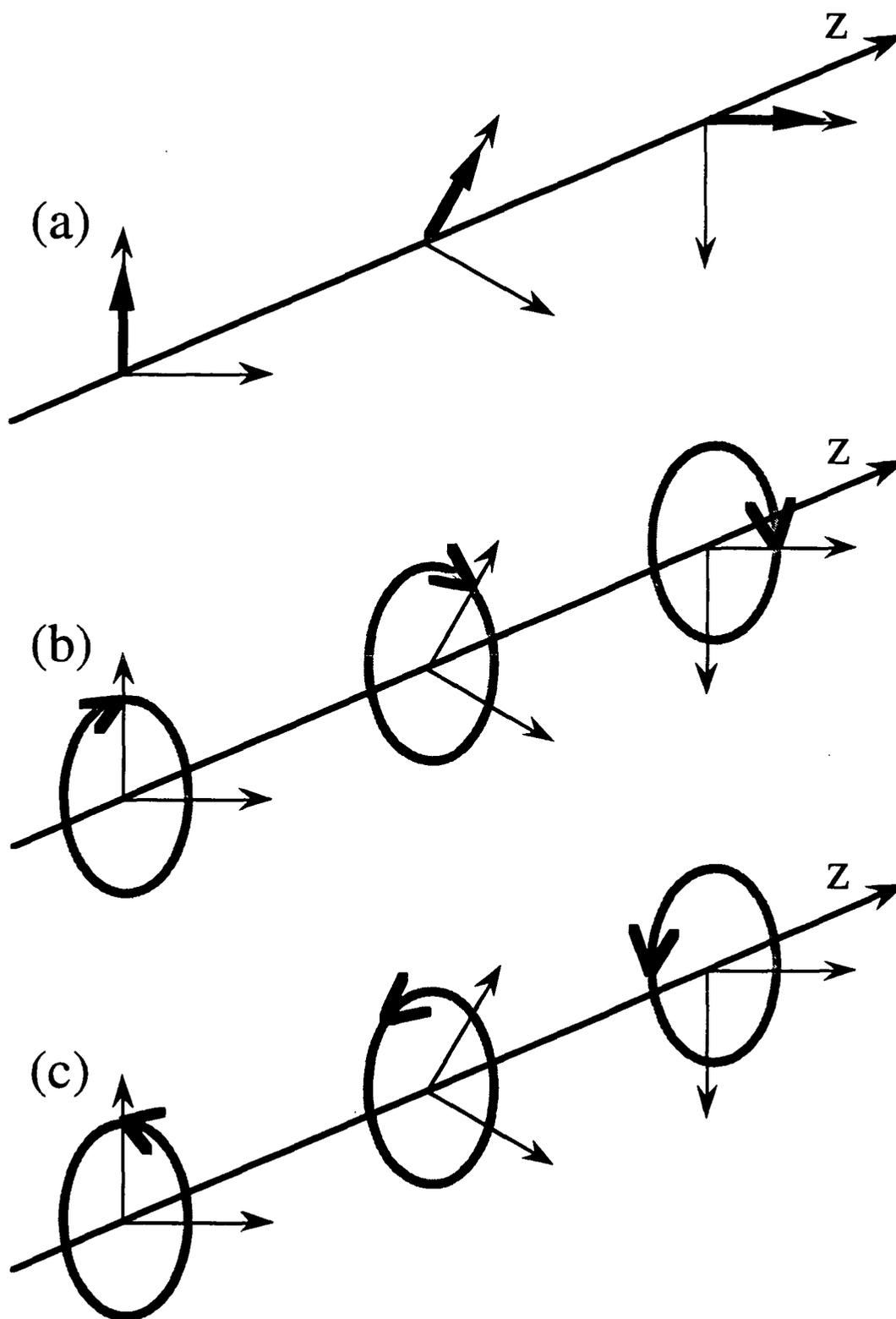
Les observables impliquées dans la réponse de la mélasse optique à l'excitation de l'onde sonde diffèrent fondamentalement dans les deux configurations de polarisation \parallel et \perp de la sonde. Nous allons donc les traiter ici séparément.

Il est possible de comprendre simplement les différents processus mis en jeu en se plaçant dans le référentiel tournant. On remarque alors que dans la configuration de polarisation \parallel , les éléments de matrice entre les états $|\tilde{\psi}_s\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle$ de l'opérateur décrivant les processus d'absorption-émission stimulées impliquant l'onde sonde sont indépendants de z , et ceci quelle que soit l'onde pompe (σ^+ ou σ^-) considérée. En revanche, dans la configuration de polarisation \perp et pour les processus analogues, ces éléments de matrice sont proportionnels à $e^{\pm 2ikz}$. Il s'ensuit que les processus d'absorption-émission stimulées ne modifient pas l'impulsion \tilde{p} de l'atome dans la configuration de polarisation \parallel , et que les transitions associées ne présentent pas d'élargissement Doppler (puisque les niveaux d'énergie ne dépendent pas de l'impulsion atomique à l'ordre le plus bas en $k\tilde{p}/M\Delta'$). Dans la configuration de polarisation \perp au contraire, les transitions s'accompagnent d'un transfert d'impulsion de $\pm 2\hbar k$ et les résonances présentent alors un élargissement Doppler.

a. Configuration de polarisation \parallel

La configuration de polarisation \parallel est caractérisée par le fait que les termes d'interaction de l'onde sonde avec le milieu dans le référentiel tournant sont indépendants de l'espace (Fig. IV.5-1(b)) (ceci s'exprime mathématiquement par le fait que le transformé de l'opérateur \wp (défini au §R.5) par la transformation unitaire \mathcal{U} du §IV.2.3 n'a pas de dépendance explicite en z). En conséquence, tous les processus stimulés induits par l'onde sonde n'impliqueront que des états externes de *même* impulsion \tilde{p} . Nous avons représenté schématiquement sur la Fig. IV.5.1-2 les différentes transitions stimulées induites par l'onde sonde entre les niveaux d'énergie d'un atome d'impulsion bien définie \tilde{p} .

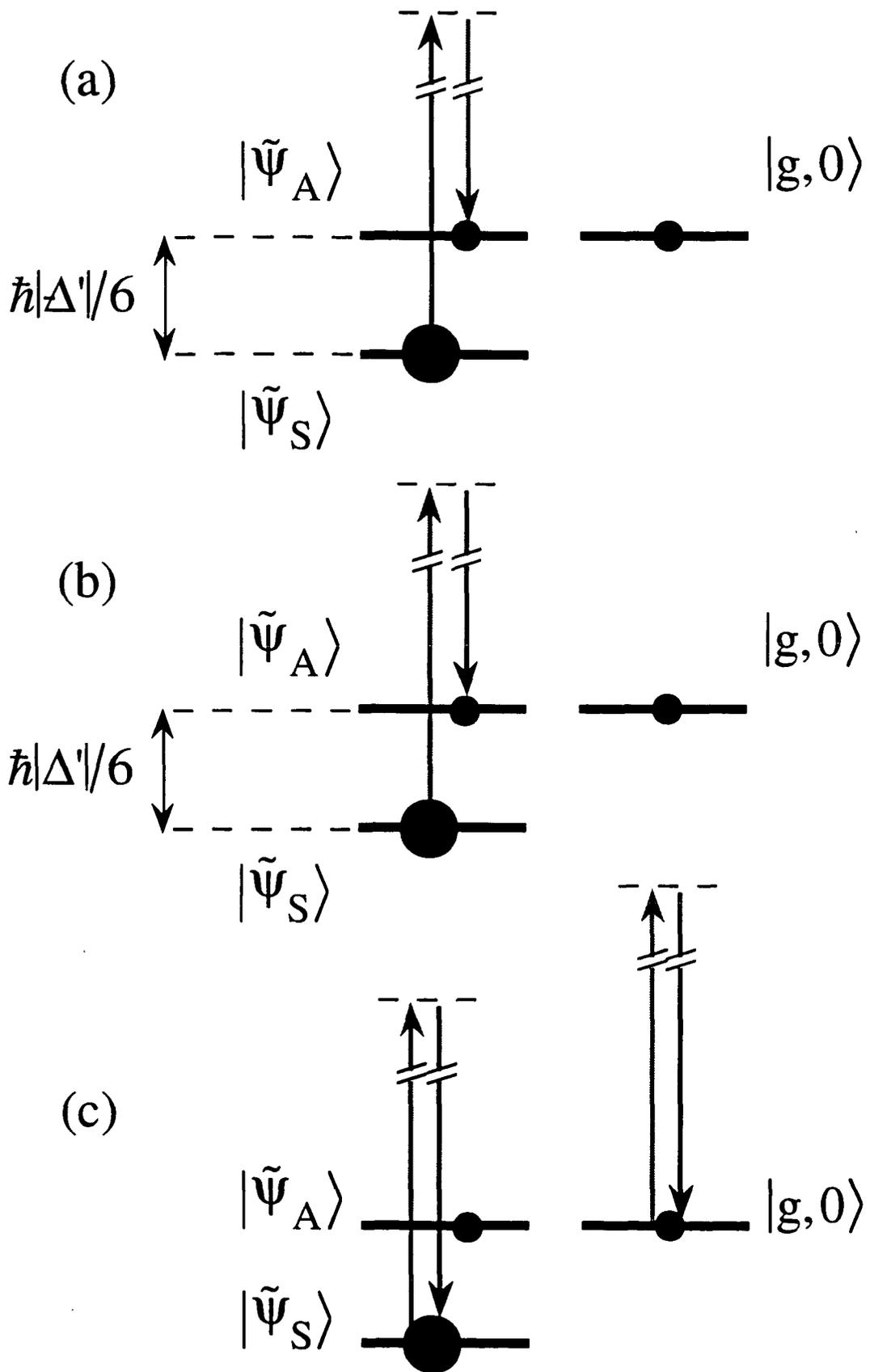
FIG 5.1-1 : Dépendance spatiale des champs lasers dans le référentiel tournant. (a) Dans le référentiel du laboratoire, la polarisation linéaire du champ de refroidissement (schématisée par un vecteur gras) tourne dans l'espace autour de l'axe Oz. Cette polarisation garde toutefois une direction fixe dans le référentiel tournant (représenté par ses deux vecteurs de base orthogonaux). (b) Dans la configuration de polarisation \parallel , la direction instantanée du champ sonde (schématisée par les flèches grasses) n'a pas de dépendance spatiale dans le référentiel tournant. (c) Cette propriété ne se retrouve pas dans la configuration de polarisation \perp . Ceci explique que les termes d'interaction de l'onde sonde avec le milieu soient modulés spatialement dans le référentiel tournant.



Tout d'abord, les niveaux d'énergie $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ étant différemment peuplés, l'onde sonde va subir un phénomène d'amplification ($\delta < 0$, Fig. IV.5.1-2(a)) ou d'absorption ($\delta > 0$, Fig. IV.5.1-2(b)) Raman stimulées lorsque $\hbar\delta$ sera de l'ordre de la différence d'énergie entre ces niveaux ($\hbar\delta \approx \pm\hbar|\Delta'|/6$). De tels processus impliquent la création par l'onde sonde de cohérences Zeeman entre les états internes $|\tilde{\psi}_S\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle$. D'après les résultats du §IV.4.1, on s'attend donc à ce que les résonances Raman stimulées associées aient une largeur de l'ordre de Γ' . De plus, la différence d'énergie entre $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ étant indépendante de \tilde{p} à la limite où la distribution d'impulsion de la mélasse correspond au domaine de linéarité de la force de refroidissement (voir §IV.2.1), *ces résonances ne subissent pas d'élargissement Doppler inhomogène.*

L'onde sonde va également être impliquée dans des processus Rayleigh stimulés lorsque $\delta \approx 0$ (Fig. IV.5.1-2(c)). Comme nous l'avons vu au chapitre II, de tels processus impliquent l'existence de phénomènes de relaxation des populations des niveaux d'énergie. Ces niveaux ayant ici la forme de produits tensoriels d'un état interne et d'un état externe, deux mécanismes de relaxation différents peuvent *a priori* conduire à une structure Rayleigh stimulée. Tout d'abord, la modulation de l'état interne des atomes par l'onde sonde relaxe sous l'effet des processus de pompage optique, avec un taux caractéristique de l'ordre de Γ' (voir §IV.4.1). D'autre part la modification de l'état externe des atomes, correspondant ici à une modulation de la distribution d'impulsion de la mélasse (car l'interaction ne couple que des états de même impulsion) relaxe avec le taux α/M (voir §IV.4.2). Il est en fait possible de montrer que la modification de l'état atomique interne par l'onde sonde est significative uniquement lorsque $\hbar\delta$ est de l'ordre de la différence d'énergie $\hbar\Delta'/6$ entre $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ [Cou93]. Sa contribution à la structure Rayleigh pourra donc être négligée devant celle associée à la modulation de la distribution d'impulsion atomique qui présente un caractère résonnant pour $|\delta| \approx \alpha/M \ll |\Delta'|/6$.

FIG. IV.5.1-2 : Transitions stimulées induites par l'onde sonde dans la configuration de polarisation II. L'onde sonde est représentée en gris et les pompes en noir. (a) Amplification Raman stimulée de l'onde sonde ($\omega_p < \omega$). (a) Absorption Raman stimulée de l'onde sonde ($\omega_p > \omega$). (c) Exemples de transitions Rayleigh stimulées ($\omega_p = \omega$) (représentation simplifiée).



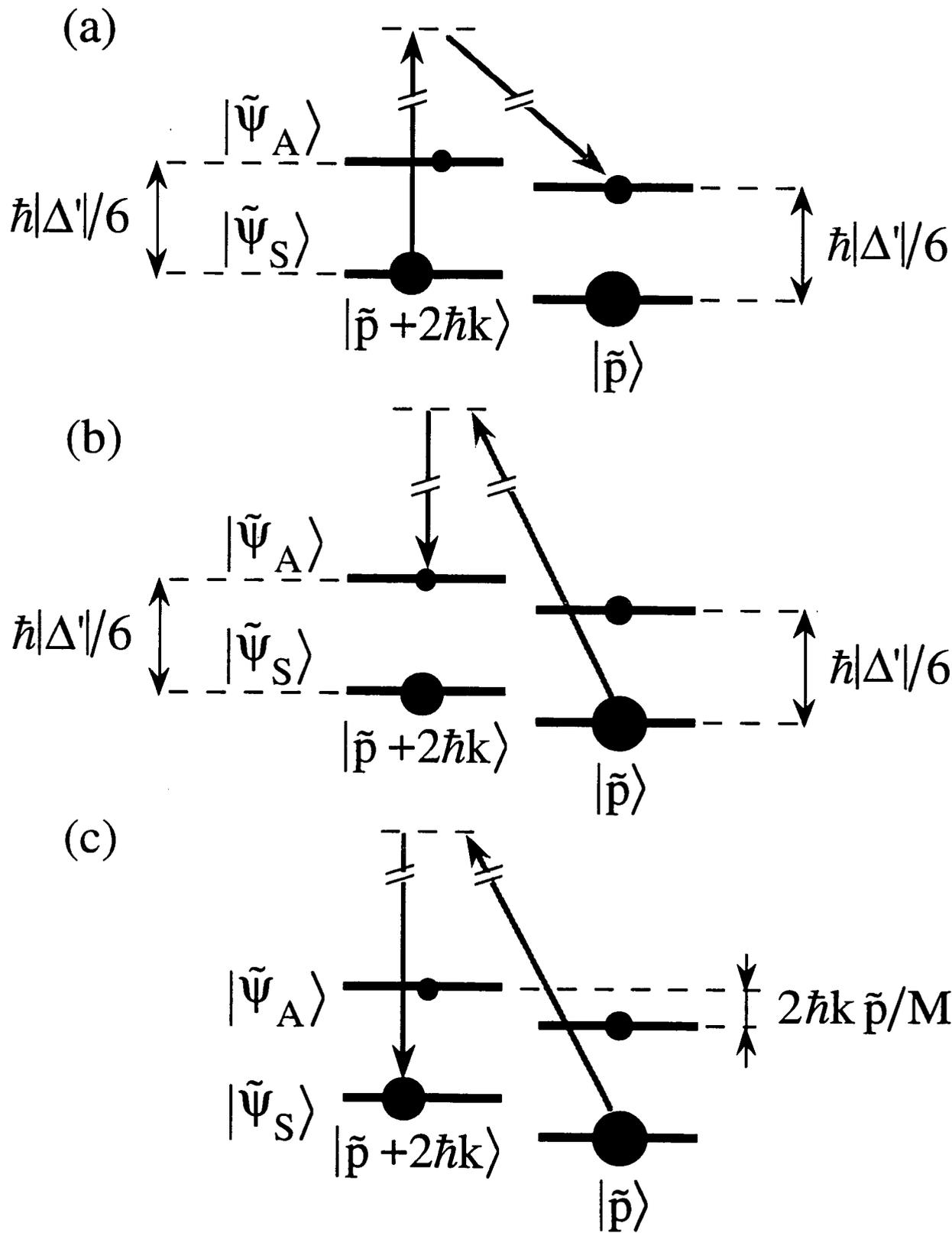
b. Configuration de polarisation \perp

La configuration de polarisation \perp se caractérise par la dépendance spatiale proportionnelle à e^{2ikz} des termes d'interaction de l'onde sonde avec le milieu dans le référentiel tournant (Fig IV.5.1-1(c)). Les processus stimulés induits par l'onde sonde vont donc impliquer des états externes d'impulsions *différant* de $\pm 2\hbar k$ (Fig. IV.5.1-3).

Comme précédemment, on distingue tout d'abord (Fig. IV.5.1-3(a)) un processus d'amplification Raman stimulée de l'onde sonde lorsque $\hbar\delta (< 0)$ est de l'ordre de la différence d'énergie entre les états $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\bar{p} + 2\hbar k\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\bar{p}\rangle$ $\left(\hbar\delta \approx -\hbar|\Delta|/6 + 2\hbar k \frac{\bar{p}}{M}\right)$, ainsi qu'un processus d'absorption Raman stimulée (Fig. IV.5.1-3(b)) lorsque $\hbar\delta (> 0)$ est de l'ordre de la différence d'énergie entre les états $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\bar{p}\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\bar{p} + 2\hbar k\rangle$ $\left(\hbar\delta \approx \hbar|\Delta|/6 + 2\hbar k \frac{\bar{p}}{M}\right)$. De telles transitions impliquent la création par l'onde sonde de cohérences Zeeman entre états internes, et l'on s'attend comme précédemment à ce que les résonances Raman associées aient une largeur de l'ordre de Γ' . Toutefois, la condition de résonance Raman dépendant ici de l'impulsion atomique \bar{p} , les structures Raman vont subir un élargissement Doppler inhomogène supplémentaire de l'ordre de $4k\bar{v}$ (bien que les largeurs Γ' et $4k\bar{v}$ ne s'ajoutent pas simplement dans le cas général).

Les transitions stimulées ayant lieu pour $\delta \approx 0$ (Fig. IV.5.1-3(c)) se distinguent fortement de celles de la configuration de polarisation \parallel . Elles impliquent en effet des états d'impulsions différentes de la forme $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\bar{p}\rangle$ et $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\bar{p} + 2\hbar k\rangle$, ayant des énergies et des populations différentes (propriété de la distribution d'impulsion atomique stationnaire). La largeur Doppler de la mélasse étant très grande devant le taux de relaxation des vitesses dans le cas d'une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ ($k\bar{v} \gg \alpha/M$), on reconnaît immédiatement l'analogie de ces transitions avec les processus Raman induits par le recul considérés au §I.4.3. La résonance associée aura donc une forme de dérivée de gaussienne, de largeur de l'ordre de $4k\bar{v}$, conformément à l'estimation des §I.4.3 et §IV.4.2.

FIG. IV.5.1-3 : Transitions stimulées induites par l'onde sonde dans la configuration de polarisation \perp . L'onde sonde est représentée en gris et les pompes en noir. (a) Amplification Raman stimulée de l'onde sonde ($\omega_p < \omega$). (a) Absorption Raman stimulée de l'onde sonde ($\omega_p > \omega$). (c) Exemples de transitions Raman stimulées induites par le recul entre états différemment peuplés appartenant au continuum d'énergie associé à la distribution d'impulsion atomique ($\omega_p \approx \omega$).



5.2. Analyse des spectres de transmission dans la configuration de polarisation II

Nous abordons à présent l'étude physique plus détaillée du mécanisme d'interaction de l'onde sonde avec le milieu dans la configuration de polarisation II. Comme nous l'avons mis en évidence précédemment, cette interaction est fondamentalement différente pour le cas des transitions Raman stimulées où l'effet de l'onde sonde est de modifier l'état atomique interne par la création de cohérences Zeeman dans le niveau fondamental, et celui de l'effet Rayleigh stimulé où le champ sonde induit une modulation de la distribution d'impulsion atomique. Nous allons donc distinguer ici ces deux types de processus.

a. Processus Raman stimulés

Afin de rendre compte des transitions Raman stimulées entre sous-niveaux Zeeman de populations et de déplacements lumineux différents, il est nécessaire de caractériser l'effet de l'onde sonde sur l'état interne de l'atome. Il est possible de montrer que cet effet provient essentiellement de la modification de la partie réactive du couplage atome-champ (déplacements lumineux) par l'action conjuguée de l'onde sonde et du faisceau pompe se propageant dans la même direction [Cou93]. Ces deux champs sont équivalents à une onde progressive de polarisation circulaire σ^+ , dont l'intensité présente une partie modulée à la fréquence de battement δ entre les deux ondes. Les déplacements lumineux induits par une telle onde dans l'état fondamental de l'atome conduisent à une levée de dégénérescence entre les sous-niveaux Zeeman atomiques semblable à celle induite par un champ magnétique longitudinal [Coh72]. L'effet de la sonde sur l'état atomique interne est donc équivalent à celui d'un champ magnétique fictif longitudinal oscillant à la fréquence δ et de fréquence de Larmor $\varepsilon \Omega_B$ proportionnelle à l'amplitude de l'onde sonde. La présence du champ sonde a donc pour effet de modifier le Hamiltonien (IV.2.3-3) selon :

$$\tilde{H}_{\parallel} = \tilde{H}_{\text{eff}}^{(0)} - \varepsilon \Omega_B \cos(\delta t) J_z \quad (\text{IV.5.2-1})$$

L'opérateur J_z ayant des éléments de matrice non nuls entre les états propres $|\tilde{\psi}_S\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle$ de \tilde{H}_{eff} , on constate qu'un processus de type "résonance magnétique" va avoir lieu entre ces niveaux différemment peuplés dès lors que $\hbar|\delta|$ sera de l'ordre de leur différence d'énergie. Ainsi, les cohérences Zeeman entre $|\tilde{\psi}_S\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle$ vont présenter un comportement résonnant autour de $\delta \approx \pm|\Delta|/6$, se manifestant sur les spectres de transmission sous la forme de résonances de largeur

$\approx \Gamma'$ (l'élargissement des niveaux $|\tilde{\psi}_S\rangle$ et $|\tilde{\psi}_A\rangle$) par pompage optique étant de l'ordre de Γ' , voir §IV.2.1). Ces structures ne sont autres que les résonances Raman stimulées précédemment discutées. Compte tenu des caractéristiques générales de telles résonances (voir chapitre I), on peut considérer que :

L'existence de résonances Raman stimulées prouve l'existence de différences de populations et de déplacements lumineux dans l'état fondamental.

Notons pour conclure que ces processus Raman ne sont pas caractéristiques des mélasses optiques $\sigma^+ - \sigma^-$. Ils présentent en effet de grandes analogies avec ceux étudiés au §I.4.2 dans le cas des vapeurs atomiques, le passage dans le référentiel tournant permettant d'interpréter le champ pompe comme un champ de polarisation linéaire. Comme nous l'avons mentionné au §I.4.2, les mélasses $\sigma^+ - \sigma^-$ permettent toutefois de travailler à faible désaccord laser et donc d'obtenir un spectre Raman d'allure dispersive du type de celui de la Fig. I.4.2-2(c). Ceci est d'ailleurs clairement visible sur les spectres expérimentaux du §IV.3.

b. Processus Rayleigh stimulés

Nous nous intéressons à présent à la structure Rayleigh stimulée du spectre de transmission, dont nous avons vu qu'elle était liée à la modification de la distribution d'impulsion atomique par la sonde. Nous allons dans un premier temps interpréter cette modification par un changement induit par l'onde sonde de la force de pression de radiation exercée sur les atomes, puis nous montrerons par quel mécanisme elle conduit à un transfert de puissance vers l'onde sonde.

(i) Modification du milieu par l'onde sonde

Identifions tout d'abord les phénomènes susceptibles d'entraîner au premier ordre en l'amplitude de l'onde sonde une modification de la force de pression de radiation exercée par les champs sur les atomes. Premièrement, nous avons vu que l'interférence de l'onde sonde avec la pompe se propageant dans la même direction qu'elle conduit à une modulation temporelle de l'intensité du champ polarisé σ^+ , et donc nécessairement à une modification de la pression de radiation exercée sur l'atome (dont l'état interne n'est pas affecté par l'onde sonde). Nous noterons la partie modulée de cette force f_p (P comme Pression de radiation exercée par la sonde).

Deuxièmement, comme le montre l'expression (IV.2.3-7), une éventuelle modulation de l'orientation atomique par l'onde sonde entraîne une modification de la pression de radiation exercée par les ondes pompes. Or nous savons que l'effet de l'onde sonde sur l'état atomique interne est décrit par le Hamiltonien (IV.5.2-1). Il suffit donc de remarquer que \tilde{H}_\parallel n'est autre que le Hamiltonien effectif (IV.2.3-3) où kv est remplacé par $kv - \varepsilon\Omega_B \cos(\delta t)$, pour déduire (en utilisant le résultat (IV.2.3-7)) l'expression de l'orientation d'un atome de vitesse v en présence de l'onde sonde :

$$\langle J_z(v) \rangle \propto \hbar \frac{kv - \varepsilon\Omega_B \cos(\delta t)}{\Delta'} \quad (\text{IV.5.2-2})$$

Cette orientation possède une partie modulée temporellement à la fréquence δ , qui correspond à une modification supplémentaire de la force appliquée aux atomes. Nous noterons la composante modulée de cette force f_B (B pour rappeler le rôle du champ magnétique fictif associé à l'onde sonde dans la modification de l'état atomique interne). On trouve finalement que la force totale de pression de radiation exercée par les champs pompes et sonde sur l'atome est de la forme :

$$F = -\alpha v + \varepsilon(f_P + f_B) \cos(\delta t) \quad (\text{IV.5.2-3})$$

On peut alors évaluer l'influence de la sonde sur la vitesse moyenne $\langle v \rangle$ de la mélasse, par résolution de l'équation fondamentale de la dynamique $Md\langle v \rangle/dt = F$. On obtient alors immédiatement :

$$\langle v \rangle = \varepsilon \frac{f_P + f_B}{M} \frac{1}{\delta^2 + (\alpha/M)^2} [\delta \sin(\delta t) + (\alpha/M) \cos(\delta t)] \quad (\text{IV.5.2-4})$$

qui décrit un effet d'entraînement de la mélasse par l'onde sonde. On constate sur l'expression (IV.5.2-4) la présence d'un terme en quadrature par rapport à l'excitation de l'onde sonde. Il décrit l'effet de retard du milieu à la sollicitation de l'onde sonde en raison du taux de réponse fini α/M de la vitesse atomique. Comme nous l'avons vu au §IV.2.3, la mise en mouvement d'un atome dans une mélasse $\sigma^+ - \sigma^-$ se traduit par la création d'une orientation de signe opposé à sa vitesse (Eq. (IV.2.3-7)). On s'attend donc à ce que la modulation de vitesse moyenne du milieu par l'onde sonde (IV.5.2-4) se traduise par l'induction d'une orientation totale non nulle de la mélasse. On peut estimer que la valeur de cette orientation est donnée en bonne approximation par $\langle J_z(\langle v \rangle) \rangle^{(0)}$, soit d'après (IV.5.2-4) et (IV.2.3-7) :

$$\langle J_z(\langle v \rangle) \rangle^{(0)} \propto \varepsilon \frac{\hbar k}{M \Delta'} \left[\frac{(f_P + f_B) \delta}{(\alpha/M)^2 + \delta^2} \sin(\delta t) + \frac{(\alpha/M) f_P - (M/\alpha) \delta^2 f_B}{(\alpha/M)^2 + \delta^2} \cos(\delta t) \right] \quad (\text{IV.5.2-5})$$

Insistons pour conclure sur l'origine de la création d'orientation par la sonde dans la mélasse $\sigma^+ - \sigma^-$. L'effet fondamental de l'onde sonde est de moduler temporellement la distribution d'impulsion du milieu par modification de la force de pression de radiation exercée sur les atomes. C'est parce que le champ hélicoïdal de refroidissement oriente les atomes proportionnellement à leur vitesse que la mélasse acquiert une orientation totale non nulle.

(ii) Mécanisme de diffraction des ondes pompes

L'effet de l'onde sonde sur le milieu ayant été caractérisé, nous allons à présent étudier le mécanisme de transfert de puissance vers l'onde sonde. Nous savons que ce transfert fait intervenir la valeur moyenne de l'opérateur \wp_{\parallel} (Eq. (R.5.7)) qui, dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$, se réduit en bonne approximation à [Rq.IV-11] :

$$\wp_{\parallel} \approx \frac{5}{12} (J_z / \hbar) \quad (\text{IV.5.2-6})$$

L'expression (IV.5.2-6) montre donc que le transfert de puissance vers l'onde sonde est dû à l'interaction de l'onde pompe se copropageant avec la sonde (\wp_{\parallel} est indépendant de z) avec la modulation d'orientation du milieu. Nous savons en effet qu'un milieu dont l'orientation est non nulle présente une biréfringence circulaire modifiant l'indice des ondes polarisées circulairement (§II.4.2). Ainsi l'orientation (IV.5.2-5) va-t-elle induire une modulation de la phase de l'onde pompe polarisée σ^+ à la fréquence δ , conduisant à un champ de même polarisation et même fréquence que l'onde sonde, et pouvant donc interférer avec elle. Dans la mesure où l'orientation est déphasée par rapport à l'excitation des champs en raison du taux de réponse fini de la distribution d'impulsion atomique, cette interférence va se traduire par un transfert de puissance vers l'onde sonde. L'expression de la densité de puissance transférée se déduit aisément de (IV.5.2-5), (IV.5.2-6) et (R.5.6) :

$$\mathcal{P} \propto N (\hbar \omega^2 / M c) \frac{(f_P + f_B) \delta}{(\alpha / M)^2 + \delta^2} \quad (\text{IV.5.2-7})$$

[Rq.IV-11] L'opérateur \wp comporte également un terme proportionnel à l'opérateur identité I (qui ne contribue pas au transfert de puissance en raison de la conservation de la population totale des niveaux d'énergie), ainsi que des termes d'alignement dont la contribution est négligeable devant celle de l'orientation (voir §IV.6.1).

où nous avons négligé la largeur naturelle du niveau excité devant le désaccord à résonance des lasers (Eq. (IV.2.1-4)). Nous trouvons ainsi que la résonance Rayleigh stimulée a une forme dispersive, et une largeur égale à $2\alpha/M$ [Rq.IV-12]. Ainsi :

La largeur de la résonance Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel donne un accès expérimental direct au coefficient de friction de la force de refroidissement.

Nous avons finalement montré que l'existence d'une structure Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel était due à la modulation d'orientation du milieu par l'onde sonde. De plus, la proportionnalité de sa largeur avec le taux d'amortissement de la vitesse des atomes montre que l'orientation du milieu est liée à une modification de sa distribution d'impulsion. On peut donc également considérer que :

L'existence d'une résonance Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel est une preuve du lien entre vitesse et orientation atomique dans une mélasse $\sigma^+-\sigma^-$.

(iii) Caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé

Nous sommes à présent en mesure de résumer les caractéristiques de l'effet Rayleigh stimulé des mélasses optiques 1D $\sigma^+-\sigma^-$ dans la configuration de polarisation \parallel , en répondant aux différents critères de classification énoncés au chapitre II (Tableau IV.5.2-1). Comme nous l'avons vu, cet effet est lié à la modification de la distribution d'impulsion de la mélasse par l'onde sonde sans modulation de la densité atomique. Il pourrait donc sembler que les mélasses optiques 1D $\sigma^+-\sigma^-$ constituent un exemple de milieu dont la susceptibilité électrique présente une forte dépendance en température (nous avons vu au §II.3.2 que ce n'est pas le cas des milieux usuels). Ce n'est en réalité pas le cas car la distribution d'impulsion de la mélasse en présence de l'onde sonde est très différente d'une distribution de Maxwell-Boltzmann, et ne peut s'interpréter comme une modification de température. Il est toutefois exact qu'en raison des propriétés particulières du mécanisme de refroidissement $\sigma^+-\sigma^-$, la susceptibilité électrique des mélasses 1D $\sigma^+-\sigma^-$ présente une très forte dépendance en fonction de la distribution d'impulsion du milieu.

[Rq.IV-12] Nous avons considéré ici α/M comme taux de relaxation unique de la distribution d'impulsion atomique. Or nous verrons au §IV.6 que tous les taux de la forme $n\alpha/M$ (avec n entier) peuvent être impliqués dans la relaxation de cette distribution. Nous montrerons toutefois que seul le mode dynamique de taux α/M contribue au spectre de transmission et que l'estimation donnée ici est donc correcte.

MILIEU DIFFUSEUR		
Propriétés physiques	Centres diffuseurs	Influence des pompes
Mélasse optique $\sigma^+-\sigma^-$ Au-delà du seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler	Atomes Transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$	Deux ondes se propageant en sens opposés, de même intensité et même fréquence Désaccord rouge Faible saturation Polarisations circulaires \perp
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation	Origine de la relaxation	Influence des pompes
α/M α : coefficient de friction de la force de ralentissement	Force de friction (origine du ralentissement)	Origine du mécanisme de relaxation
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
<i>Modification de la distribution d'impulsion atomique</i> (entraînant la création d'une orientation dans le milieu)	Polarisation circulaire \parallel à celle de l'onde pompe se propageant dans le même sens	Déphasage de l'onde pompe se propageant dans le même sens par biréfringence circulaire

Tableau IV.5.2-1 : Caractéristique de l'effet Rayleigh stimulé $\sigma^+-\sigma^-$ (\parallel) dans le cas d'une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$

c. Allure du spectre de transmission

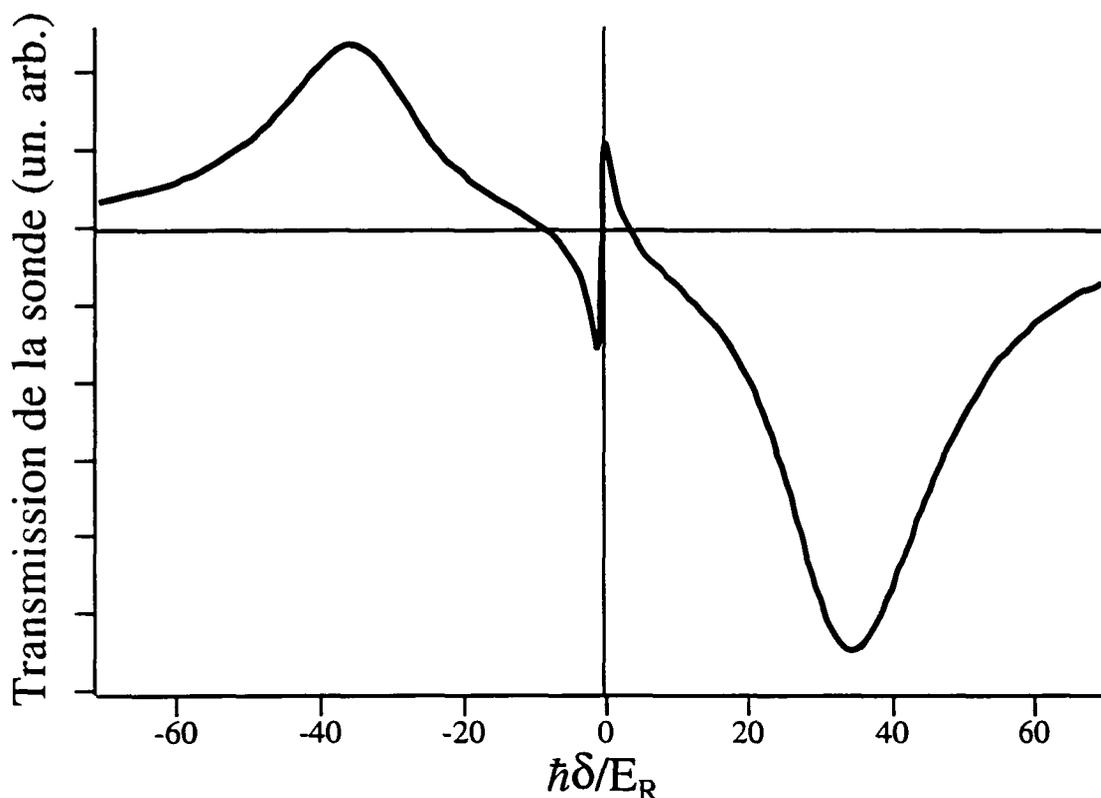


FIG. IV.5.2-1 : Spectre de transmission de l'onde sonde dans la configuration de polarisation II pour une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$, un désaccord à résonance $\Delta = -5\Gamma$, et un paramètre $\hbar|\Delta'| = 200 E_R$, en fonction du paramètre sans dimension $\hbar\delta/E_R$. On observe deux résonances Raman stimulées de forme lorentzienne centrées en $\delta \approx \pm \Delta'/6$ et de largeur de l'ordre de Γ' , ainsi qu'une structure Rayleigh stimulée de forme dispersive et de largeur $2\alpha/M \approx 1.5 E_R/\hbar$.

Nous concluons l'étude du spectre de transmission dans la configuration de polarisation II en comparant les résultats expérimentaux du §IV.2 avec les spectres calculés numériquement par un modèle plus élaboré que la discussion physique présentée ici [Rq.IV-13]. Nous avons ainsi représenté sur la Fig. IV.5.2-1 le spectre de transmission pour une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ correspondant à un désaccord à résonance $\Delta = -5\Gamma$, et au paramètre $\hbar|\Delta'| = 200 E_R$. Nous constatons un bon accord qualitatif avec le spectre expérimental de la Fig. IV.2.2(a). On retrouve en effet sur les deux spectres la présence de résonances Raman stimulées de forme lorentzienne et de largeur de l'ordre de Γ' [Rq.IV-14], ainsi que d'une structure Rayleigh stimulée dispersive de

[Rq.IV-13] Pour plus de détails concernant cette méthode, se reporter au §IV.6 ainsi qu'à la Réf. [Cou93] jointe en annexe B.IV.

[Rq.IV-14] Les résonances Raman du spectre expérimental n'ont pas exactement une forme de lorentzienne, car leur distance est inférieure à leur largeur (voir §I.4.2).

largeur égale à $2\alpha/M$ [Rq.IV-15]. Rappelons que la différence d'amplitude entre les deux résonances Raman est liée au fait que les coefficients de Clebsch-Gordan impliqués dans l'amplification et l'absorption de l'onde sonde sont différents (voir §I.4.2).

5.3. Analyse des spectres de transmission dans la configuration de polarisation \perp

Nous étudions à présent le mécanisme d'interaction de l'onde sonde avec le milieu dans la configuration de polarisation \perp . Comme précédemment, nous allons distinguer le cas des transitions Raman stimulées impliquant la création par l'onde sonde de cohérences Zeeman dans le niveau fondamental de l'atome, et celui de la structure centrale dont nous avons vu au §IV.5.1 qu'elle était de type résonance Raman induite par le recul.

a. Processus Raman stimulés

Afin de rendre compte des transitions Raman stimulées entre sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental de populations et de déplacements lumineux différents, il est nécessaire de caractériser dans le référentiel tournant l'effet de l'onde sonde sur l'état interne d'un atome d'impulsion \tilde{p} . Il est possible de montrer que cet effet provient essentiellement de la modification de la partie réactive du couplage atome-champ par l'action conjuguée de l'onde sonde et du faisceau pompe se propageant dans la direction opposée [Cou93]. Ces deux champs sont équivalents à une onde stationnaire de polarisation circulaire σ^- dont l'intensité présente une partie modulée à la fréquence $\delta - 2k\tilde{p}/M$, et modifie le Hamiltonien (IV.2.3-3) selon :

$$\tilde{H}_\perp = \tilde{H}_{\text{eff}}^{(0)} + \varepsilon\Omega_B \cos[(\delta - 2k\tilde{p}/M)t] J_z \quad (\text{IV.5.3-1})$$

Comme précédemment, la partie oscillante du Hamiltonien (IV.5.3-1) va induire un phénomène de type "résonance magnétique" entre les états $|\tilde{\Psi}_S\rangle$ et $|\tilde{\Psi}_A\rangle$ dès lors que $\hbar|\delta - 2k\tilde{p}/M|$ sera de l'ordre de leur différence d'énergie. Cette résonance va se traduire sur les spectres de transmission sous la forme d'une structure (Raman stimulée) de largeur de l'ordre de Γ' . On constate toutefois que la condition de résonance ($\delta \approx \pm|\Delta'|/6 + 2k\tilde{p}/M$) dépendant à présent de l'impulsion atomique \tilde{p} , les résonances Raman stimulées vont subir un élargissement Doppler inhomogène de l'ordre de $4k\bar{v}$.

[Rq.IV-15] La différence notable de largeur de cette structure Rayleigh entre les spectres théorique et expérimental provient du fait que le coefficient de friction de la force de refroidissement est beaucoup plus important pour une transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ que pour une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$.

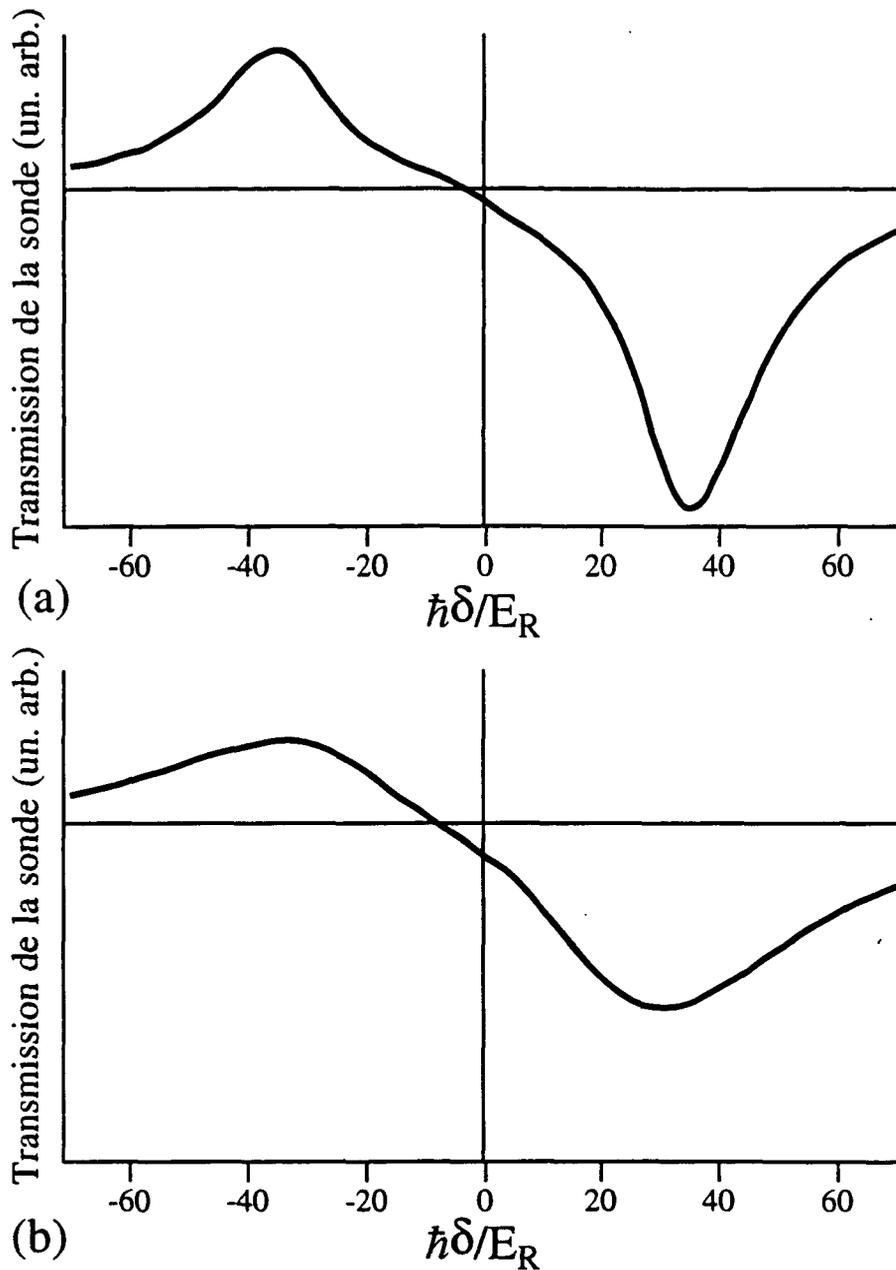


FIG. IV.5.3-1 : Comparaison entre les spectres Raman de transmission de l'onde sonde pour une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ dans les configurations de polarisation \parallel (a) et \perp (b). Les paramètres des ondes pompes sont les mêmes que pour la Fig. IV.5.2-1. On constate que les résonances Raman ont une amplitude plus faible et une largeur plus grande dans le cas \perp que dans le cas \parallel , la différence de largeur étant de l'ordre de $30 E_R/\hbar$, en bon accord avec l'estimation $4k\bar{v} \approx 40 E_R/\hbar$.

Il apparaît ainsi qu'une comparaison des largeurs des structures Raman dans les configurations de polarisation \parallel et \perp permet en principe d'obtenir une estimation de la largeur Doppler de la mélasse [Rq.IV-16], et par suite :

La différence de largeurs des résonances Raman stimulées dans les configurations de polarisation \parallel et \perp permet d'estimer la température de la mélasse.

Nous avons représenté sur la Fig. IV.5.3-1 les spectres Raman théoriques correspondant aux deux configurations de polarisation \parallel (Fig IV.5.3-1(a)) et \perp (Fig IV.5.3-1(b)) de l'onde sonde. On remarque que les structures Raman sont plus larges et moins intenses dans la configuration de polarisation \perp , en bon accord avec l'observation expérimentale (voir §IV.3). De plus, la différence de largeur entre les résonances Raman est trouvée de l'ordre de $30 E_R/\hbar$, en accord satisfaisant avec l'estimation $4k\bar{v}$ ($\approx 40 E_R/\hbar$) [Rq.IV-17].

b. Résonance Raman induite par le recul

Comme nous l'avons indiqué au §IV.5.1, une résonance Raman stimulée induite par le recul est attendue au centre des spectres de transmission de l'onde sonde dans la configuration de polarisation \perp . D'après les résultats du §I.4.3, cette structure prend la forme d'une dérivée de gaussienne de largeur proportionnelle à la largeur Doppler du milieu. Étant donnée la géométrie d'interaction retenue ici, on s'attend plus précisément à ce que la structure centrale ait une largeur de $4k\bar{v}$. Ainsi :

Dans la configuration de polarisation \perp , la largeur de la résonance Raman induite par le recul donne un accès direct à la température de la mélasse.

Nous avons représenté sur la Fig. IV.5.3-2 le spectre de transmission total de l'onde sonde dans la configuration de polarisation \perp pour un désaccord à résonance $\Delta = -10\Gamma$, et un paramètre $\hbar|\Delta'| = 2000E_R$ [Rq.IV-18]. On voit clairement apparaître au centre du spectre une résonance Raman induite par le recul ayant la forme d'une dérivée de gaussienne, et de largeur égale à $4k\bar{v} \approx 120 E_R/\hbar$ (estimation théorique). Toutefois, le spectre expérimental de la

[Rq.IV-16] Notons toutefois que les modifications de l'état interne atomique par l'onde sonde sont *différentes* dans les deux configurations de polarisation, ce qui rend difficile une mesure *quantitative* de la largeur Doppler par comparaison directe des résonances Raman.

[Rq.IV-17] Notons que la différence de largeur des résonances Raman mesurée sur les spectres expérimentaux \parallel et \perp de la Fig. IV.3-2 est également en bon accord avec la valeur théorique de $4k\bar{v}$ pour la transition $J_g=4 \rightarrow J=5$ (voir [Lou93c]).

[Rq.IV-18] Pour le détail de la méthode de calcul de ce spectre, voir §IV.6.2 et la Réf. [Cou93] (annexe B.IV).

Fig. IV.2-2(b) ne laisse apparaître aucune résonance Raman induite par le recul. Ceci pourrait être lié à un choix inadéquat des paramètres expérimentaux conduisant à la superposition des résonances Raman stimulées et de la structure induite par le recul [Rq.IV-19], ou à une très faible amplitude de la résonance induite par le recul dans le cas d'une transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ [Rq.IV-20]. Seule une étude expérimentale systématique des spectres de transmission dans la configuration de polarisation \perp pourrait permettre d'apporter une réponse inamalgable à ce problème.

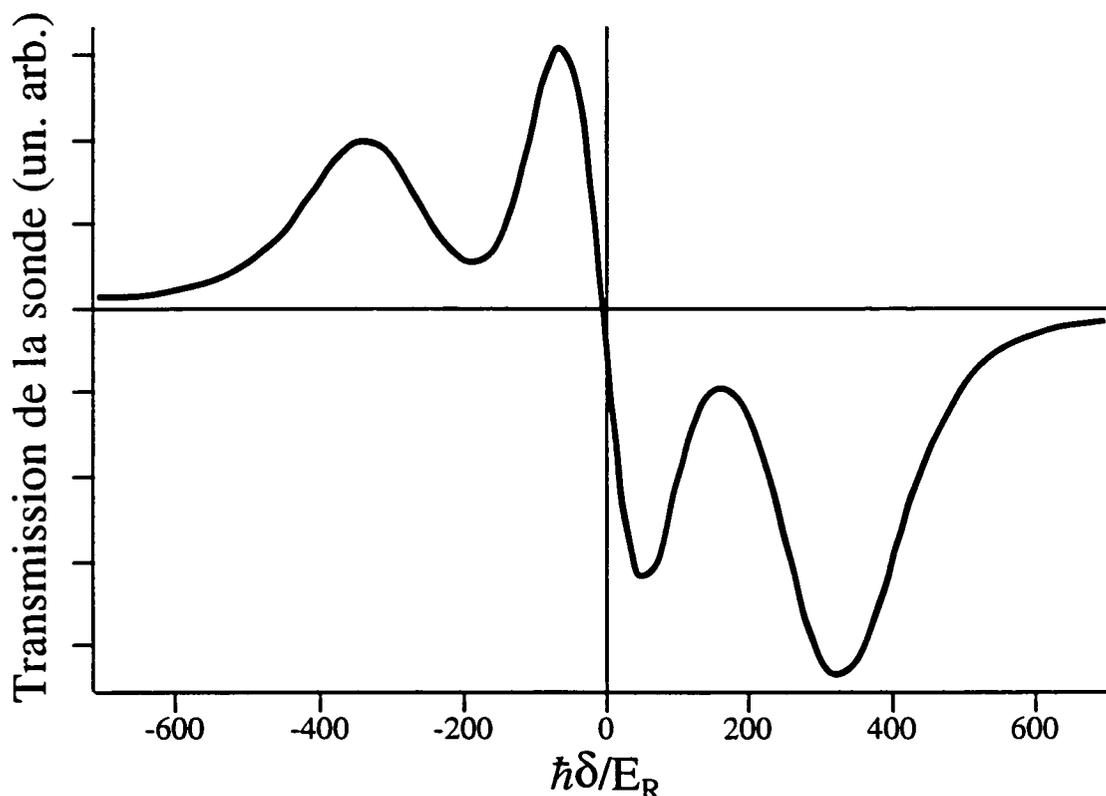


FIG. IV.5.3-2 : Spectre de transmission de l'onde sonde dans la configuration de polarisation \perp pour une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$, un désaccord à résonance $\Delta = -10\Gamma$, et un paramètre $\hbar|\Delta'| = 2000 E_R$, en fonction du paramètre sans dimension $\hbar\delta/E_R$. On observe deux résonances Raman stimulées de forme lorentzienne centrées en $\delta \approx \pm\Delta'/6$ et de largeur de l'ordre de Γ' , ainsi qu'une structure Raman induite par le recul ayant la forme d'une dérivée de gaussienne et de largeur $4k\bar{v} \approx 120 E_R/\hbar$.

[Rq.IV-19] La valeur de $4k\bar{v}$ correspondant au spectre de la Fig. IV.2-2(b) est en effet de l'ordre de 140 kHz, à comparer à la distance pic-à-pic ≈ 300 kHz des raies Raman.

[Rq.IV-20] Il est également possible que les approximations faites pour calculer le spectre de la Fig. IV.5.3-2 (voir §IV.6.2) ne permettent pas de rendre compte de façon quantitative de la structure centrale.

6. Principe d'un calcul quantitatif des spectres de transmission

Nous avons présenté au paragraphe précédent l'interprétation des spectres de transmission en mettant l'accent sur les phénomènes physiques impliqués dans l'interaction de l'onde sonde avec la mélasse. Une telle approche, qualitativement correcte, ne permet toutefois pas de prévoir de manière quantitative la forme et l'amplitude des résonances, et en particulier de démontrer clairement la proportionnalité directe entre la largeur de résonance Rayleigh dans la configuration de polarisation \parallel et le coefficient de friction de la force de refroidissement. On peut également se demander si les courbes expérimentales sont sensibles au phénomène de diffusion en impulsion. Afin de donner un début de réponse à ces questions, nous consacrons ce paragraphe à l'exposition du principe d'étude quantitative de l'interaction sonde-mélasse qui a été retenu pour le calcul des spectres présentés dans ce chapitre, et qui repose sur une description des degrés de liberté atomiques externes au moyen d'une équation de Fokker-Planck obtenue par élimination adiabatique des variables dynamiques internes [Ber92]. Dans la mesure où nous nous intéressons uniquement aux situations les plus proches de l'optimum du refroidissement σ^+ - σ^- , nous nous restreindrons dans ce paragraphe au cas où la largeur de la distribution stationnaire d'impulsion $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ est inférieure au domaine de linéarité de la force de ralentissement $F^{(0)}$ (domaine d'efficacité du mécanisme de refroidissement sub-Doppler). Cette situation est caractérisée par la condition :

$$u = kv/|\Delta'| \ll 1 \quad (\text{IV.6-1})$$

Comme au paragraphe précédent, la grande différence des processus physiques impliqués dans les deux configurations de polarisation de l'onde sonde étudiées expérimentalement va nous amener à les traiter séparément. Nous envisagerons ainsi tout d'abord le cas \parallel (§IV.6.1), où nous décrirons précisément la modification de la distribution d'impulsion atomique par l'onde sonde au moyen d'une équation de Fokker-Planck prenant en compte l'effet de la sonde sur la force de refroidissement et sur le coefficient de diffusion en impulsion de la mélasse. Puis nous considérerons (§IV.6.2) le cas \perp (qu'il n'est pas possible de décrire au moyen d'une équation de Fokker-Planck [Cou93]) pour lequel nous proposerons un modèle simplifié de calcul de la résonance Raman induite par le recul.

6.1. Configuration de polarisation II

Nous montrons ici comment il est possible de caractériser rigoureusement l'état de l'atome (transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$) en présence de l'onde sonde dans la configuration de polarisation II. Comme nous l'avons mentionné précédemment, une telle caractérisation est simplifiée par deux facteurs. Premièrement le temps d'évolution typique des variables atomiques externes étant beaucoup plus long que celui des variables internes, celles-ci peuvent être éliminées adiabatiquement. Deuxièmement, le passage dans le référentiel tournant par la transformation unitaire (IV.2.3-1) élimine toute dépendance spatiale des termes d'interaction atome-champs et permet de décrire entièrement l'état externe de la mélasse au moyen de sa distribution d'impulsion $\tilde{\pi}(\vec{p})$.

La combinaison de ces deux propriétés permet de caractériser la matrice densité atomique en deux étapes. La première consiste à déterminer la distribution d'impulsion stationnaire $\tilde{\pi}_{st}(\vec{p})$ à partir de l'équation de Fokker-Planck régissant l'évolution temporelle de la distribution d'impulsion de la mélasse [Ber92] :

$$\partial_t \tilde{\pi} = -\partial_{\vec{p}}(F \tilde{\pi}) + \partial_{\vec{p}}(D \partial_{\vec{p}} \tilde{\pi}) \quad (\text{IV.6.1-1})$$

où F et D représentent la force de refroidissement et le coefficient de diffusion en impulsion en présence des champs pompes *et* sonde. La seconde consiste à évaluer l'état interne stationnaire $\tilde{W}_{0,st}(\vec{p})$ d'un atome d'impulsion \vec{p} bien définie. La matrice densité atomique totale s'écrit alors :

$$\tilde{\sigma}_{st} = \tilde{\pi}_{st}(\vec{p}) \tilde{W}_{0,st}(\vec{p}) \quad (\text{IV.6.1-2})$$

Comme pour toute expérience pompe-sonde, les quantités sont développées au premier ordre en ϵ (petit paramètre égal au rapport des amplitudes des champs sonde et pompes). La distribution stationnaire d'impulsion prend donc la forme :

$$\tilde{\pi}_{st} = \tilde{\pi}_{st}^{(0)} + \epsilon \left[\tilde{\pi}_{st}^{(1)} e^{-i\delta t} + \text{c. c.} \right] \quad (\text{IV.6.1-3})$$

de même que la matrice densité atomique interne :

$$\tilde{W}_{0,st} = \tilde{W}_{0,st}^{(0)} + \epsilon \left[\tilde{W}_{0,st}^{(1)} e^{-i\delta t} + \text{h. c.} \right] \quad (\text{IV.6.1-4})$$

La matrice densité atomique totale est alors donnée par :

$$\tilde{\sigma}_{st} = \tilde{\sigma}_{st}^{(0)} + \epsilon \left[\tilde{\sigma}_{st}^{(1)} e^{-i\delta t} + \text{h. c.} \right] \quad (\text{IV.6.1-5})$$

avec :

$$\tilde{\sigma}_{st}^{(0)} = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(\tilde{p}) \quad (\text{IV.6.1-6})$$

et :

$$\tilde{\sigma}_{st}^{(1)} = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(\tilde{p}) + \tilde{\pi}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(\tilde{p}) \quad (\text{IV.6.1-7})$$

La détermination de la distribution d'impulsion stationnaire en l'absence de sonde $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ s'effectue par résolution de l'équation :

$$\mathcal{L} \cdot \tilde{\pi}_{st}^{(0)} = 0 \quad (\text{IV.6.1-8})$$

avec :

$$\mathcal{L} \cdot \tilde{\pi} = -\partial_{\tilde{p}} \left(F^{(0)} \tilde{\pi} \right) + \partial_{\tilde{p}} \left(D^{(0)} \partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi} \right) \quad (\text{IV.6.1-9})$$

A la limite (IV.6-1) considérée ici, il est possible d'approximer $F^{(0)}$ par une force de friction pure, et $D^{(0)}$ par une constante. On trouve alors :

$$\tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(0) \exp(-\varpi \tilde{p}^2) \quad (\text{IV.6.1-10})$$

avec :

$$\varpi = \frac{\alpha}{2MD^{(0)}} = \frac{1}{2Mk_B T} \quad (\text{IV.6.1-11})$$

où k_B est la constante de Boltzmann et T la température de la mélasse.

Le calcul de l'état atomique interne à impulsion fixée $\tilde{W}_{0,st}(\tilde{p})$ ne présente aucune difficulté (voir [Cou93]). Par contre, celui de la modification de la distribution d'impulsion par l'onde sonde est plus subtil et dépend notamment de la valeur relative de δ et de α/M . Il est donc nécessaire d'effectuer la distinction entre le cas des structures Raman et Rayleigh stimulées.

a. Résonances Raman stimulées

Le temps de réponse caractéristique des variables atomiques externes étant de l'ordre de $\alpha/M \ll |\Delta|$ (voir §IV.4), les résonances Raman stimulées pour lesquelles $\delta \approx \pm \Delta'$ se caractérisent par l'absence de modification de la distribution d'impulsion stationnaire de la mélasse $\tilde{\pi}_{st}$ par la sonde, qui se réduit donc à celle $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ en présence des seules pompes. La matrice densité

(IV.6.1-7) prend donc la forme réduite $\tilde{\sigma}_{st}^{(1)} = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(\tilde{p})$, où $\tilde{W}_{0,st}^{(1)}(\tilde{p})$ décrit les cohérences Zeeman induites par l'onde sonde dans l'état fondamental. Les structures Raman stimulées apparaissent donc comme une moyenne sur la distribution d'impulsion de la mélasse $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ de la contribution d'atomes d'impulsion différentes. Comme nous l'avons mentionné au §IV.5.1, la condition de résonance Raman est indépendante de l'impulsion atomique à la limite (IV.6-1) considérée ici. Cela ne signifie toutefois pas nécessairement que tous les atomes contribuent de la même façon aux résonances Raman. Nous avons vu en effet au §IV.2.3 que si les déplacements lumineux du fondamental sont indépendants de \tilde{p} , il n'en va pas de même des états propres (IV.2.3-6), de telle sorte que les cohérences internes induites par l'onde sonde vont dépendre de l'impulsion. On peut donc légitimement s'interroger sur la dépendance en impulsion des spectres de transmission.

En fait, à la limite (IV.6-1) où l'onde sonde ne modifie l'état atomique interne de l'atome $\tilde{W}_{0,st}^{(1)}$ qu'au premier ordre en u (voir §IV.2.3), on a :

$$\tilde{W}_{0,st}^{(1)}(u) = \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(0) + u \left[\partial_u \tilde{W}_{0,st}^{(1)} \right] (0) \quad (\text{IV.6.1-12})$$

En conséquence, la contribution moyenne des atomes d'impulsion différentes au spectre Raman va être proportionnelle à :

$$\int du \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(u) \left\{ \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(0) + u \left[\partial_u \tilde{W}_{0,st}^{(1)} \right] (0) \right\} = \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(0) \int du \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(u) \propto \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(0) \quad (\text{IV.6.1-13})$$

où nous avons utilisé le fait que $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ est une fonction paire de la variable u . On constate donc que l'effet moyen des atomes d'impulsions différentes n'est autre que celui d'un atome d'impulsion rigoureusement nulle, ce qui montre qu'à la limite (IV.6-1), le spectre Raman de la configuration de polarisation \parallel peut être calculé de façon exacte en supposant les atomes au repos [Rq.IV-21]. On peut donc considérer qu'au premier ordre en $k\bar{v}/|\Delta'|$, les résonances Raman stimulées de la configuration de polarisation \parallel ne subissent aucun phénomène d'élargissement Doppler inhomogène, ce qui confirme la propriété énoncée au §IV.5.2.

b. Résonance Rayleigh stimulée

Le cas de la résonance Rayleigh stimulée correspondant à $|\delta| \approx \alpha/M$ présente une différence fondamentale avec le cas précédent, puisque la modulation temporelle par l'onde sonde

[Rq.IV-21] Cette propriété pourrait expliquer en partie le succès du modèle considéré dans [Gri91] pour rendre compte des spectres de transmission de l'onde sonde à travers le nuage d'un piège magnéto-optique.

de la force de refroidissement et du coefficient de diffusion en impulsion va entraîner une modification de la distribution d'impulsion de la mélasse. La partie modulée de la matrice densité atomique totale prend donc la forme (IV.6.1-7), qui montre que la résonance centrale résulte de deux contributions. Le premier terme de (IV.6.1-7) correspond aux ailes des résonances Raman stimulées, tandis que le second décrit l'effet additionnel de la modification de la distribution d'impulsion du milieu par l'onde sonde (qui est l'analogie de la modulation de la vitesse moyenne $\langle v \rangle$ de la mélasse discutée au §IV.5.2).

Suivant la méthode perturbative exposée au §R.4, et que nous avons déjà largement employée aux chapitres précédents pour l'étude des résonances Rayleigh stimulées, $\tilde{\pi}_{st}^{(1)}$ s'obtient par résolution d'une équation du type :

$$(i\delta + \mathcal{L}).\pi_{st}^{(1)} = \tilde{S}_{\parallel} \quad (\text{IV.6.1-14})$$

où \mathcal{L} est l'opérateur de Liouville défini en (IV.6.1-9), et où \tilde{S}_{\parallel} est un terme source décrivant l'interaction de l'onde sonde avec le milieu. Rappelons que la résolution de (IV.6.1-14) consiste d'une part en la diagonalisation de \mathcal{L} , puis en le développement du terme source \tilde{S}_{\parallel} sur la base des modes propres de \mathcal{L} . Nous allons décrire brièvement ces deux étapes, puis nous en déduirons les propriétés du spectre Rayleigh de transmission de l'onde sonde.

(i) Diagonalisation de l'opérateur de Liouville \mathcal{L}

La diagonalisation de l'opérateur de Liouville \mathcal{L} (Eq. (IV.6.1-9)) est simple dans la limite (IV.6-1) considérée ici. Il suffit en effet d'utiliser le changement de variable $\Pi = \pi / \sqrt{\tilde{\pi}_{st}^{(0)}}$ pour transformer (IV.6.1-9) selon:

$$\mathcal{L}.\pi = -2D^{(0)} \left[-\frac{1}{2} \partial_{\vec{p}}^2 \Pi + \frac{1}{2} \varpi^2 \vec{p}^2 \Pi - \frac{1}{2} \varpi \Pi \right] \sqrt{\tilde{\pi}_{st}^{(0)}} \quad (\text{IV.6.1-15})$$

On reconnaît alors sur (IV.6.1-15) l'expression du Hamiltonien d'un oscillateur harmonique de fréquence ϖ , dont le spectre est bien connu. On trouve ainsi que l'opérateur \mathcal{L} admet pour valeurs propres :

$$\lambda_n = -n (\alpha/M) \quad (n = 0, 1, \dots) \quad (\text{IV.6.1-16})$$

et pour vecteurs propres :

$$\pi_n(\vec{p}) = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\vec{p}) H_n(\sqrt{\varpi} \vec{p}) \quad (\text{IV.6.1-17})$$

où H_n désigne le polynôme de Hermite d'ordre n . Comme attendu, le vecteur propre associé à la valeur propre $\lambda_0 = 0$ n'est autre que la distribution stationnaire d'impulsion de la mélasse $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ en l'absence de sonde. On constate également que α/M est bien un taux propre de relaxation de la distribution d'impulsion du milieu comme annoncé au §IV.5.2, mais on remarque également que ce n'est pas le seul ! Nous allons toutefois montrer par la suite que les modes d'indice $n > 1$ ne contribuent pas au spectre de transmission de la sonde, et que l'expression (IV.5.2-7) est bien justifiée.

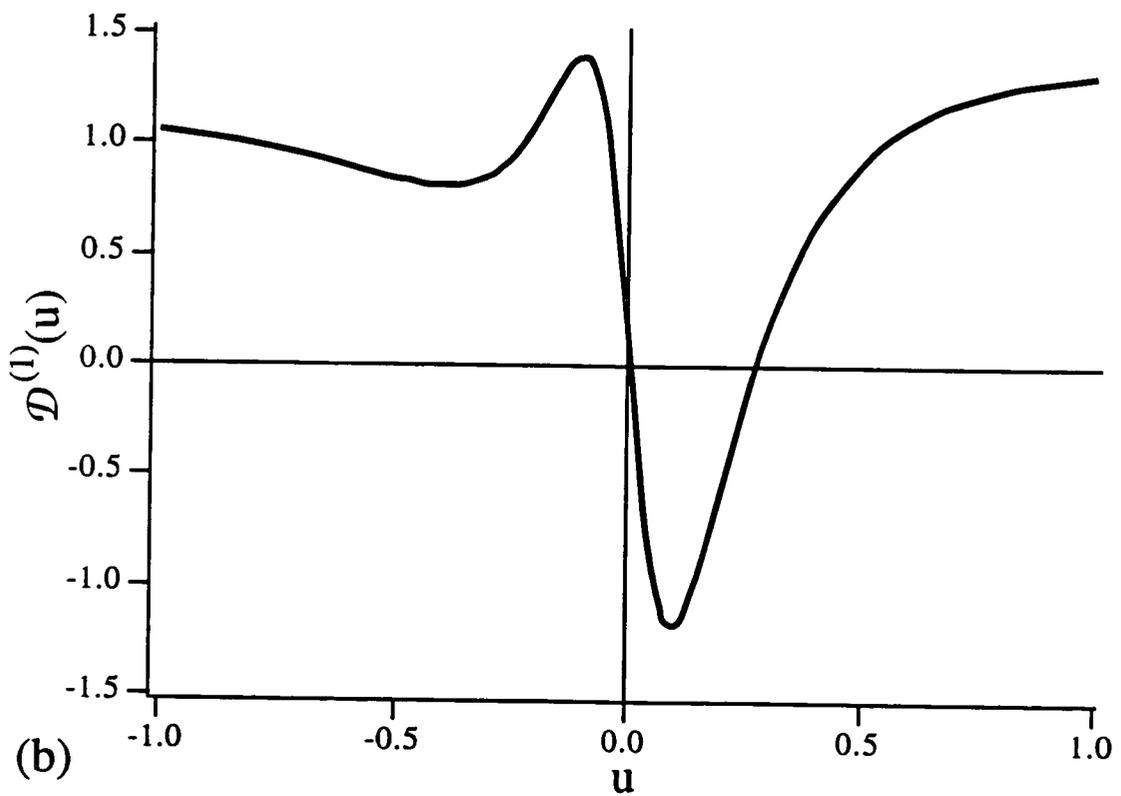
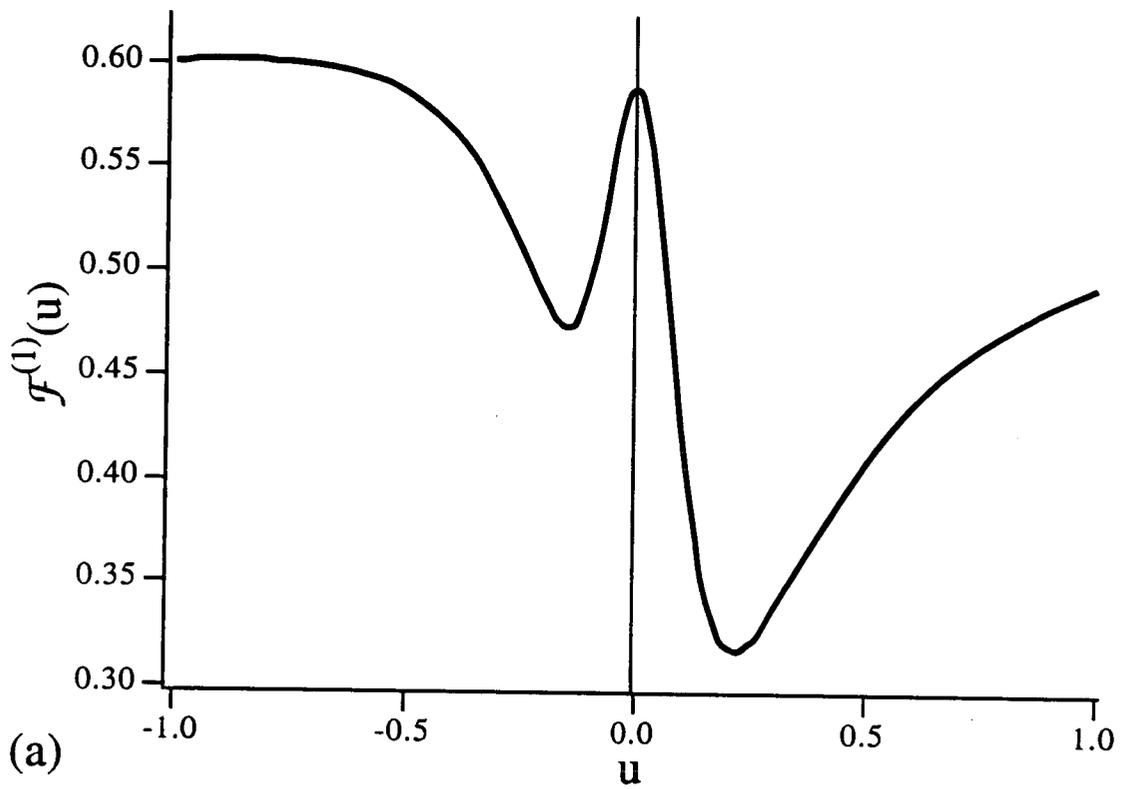
(ii) Calcul du terme source $\tilde{S}_{||}$

D'après les résultats du §R.4 et la forme de l'Eq. (IV.6.1-9), le terme source $\tilde{S}_{||}$ prend la forme :

$$\tilde{S}_{||} = \partial_{\bar{p}} \left(F^{(1)} \tilde{\pi}_{st}^{(0)} \right) - \partial_{\bar{p}} \left(D^{(1)} \partial_{\bar{p}} \tilde{\pi}_{st}^{(0)} \right) \quad (\text{IV.6.1-18})$$

où $F^{(1)}$ et $D^{(1)}$ sont définis de façon analogue à (IV.6.1-3) et correspondent aux parties modulées temporellement par l'onde sonde de la force de refroidissement et du coefficient de diffusion en impulsion. Notons que $F^{(1)}$ est l'analogie des forces f_p et f_B considérées au §IV.2. Le principe du calcul et l'interprétation physique détaillée de $F^{(1)}$ et $D^{(1)}$ sont développés dans [Cou93] (joint en annexe B.IV). Nous nous contenterons ici de représenter sur la Fig. IV.6.1-1 la dépendance de ces quantités en fonction du paramètre sans dimension $u = kv/|\Delta'|$, pour un désaccord à résonance $\Delta = -5\Gamma$. Le fait que la modification de la force de refroidissement (Fig. IV.6.1-1(a)) soit une quantité strictement positive rend compte du phénomène d'entraînement de la mélasse optique par l'onde sonde mentionné au §IV.5.2. Notons également que la modification du coefficient de diffusion en impulsion par l'onde sonde (Fig. IV.6.1-1(b)) présente une pente négative au voisinage de $u = 0$.

FIG. IV.6.1-1 : Modification de la force de refroidissement $\mathcal{F}^{(1)}$ et du coefficient de diffusion en impulsion $\mathcal{D}^{(1)}$ sans dimension en fonction de u , pour une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ et un désaccord à résonance $\Delta = -5\Gamma$. (a) La modification de la force de refroidissement par l'onde sonde est une quantité réelle positive, décrivant l'effet d'entraînement de la mélasse par la sonde. (b) Partie réelle de la modification du coefficient de diffusion en impulsion par l'onde sonde. Noter que $\mathcal{D}^{(1)}$ a une pente négative au voisinage de $u = 0$.



A la limite (IV.6-1) il est possible d'approximer les quantités sans dimension $\mathcal{F}^{(1)}$ et $\mathcal{D}^{(1)}$ par leur développement au premier ordre en u :

$$\begin{cases} \mathcal{F}^{(1)}(u) \approx \mathcal{F}^{(1)}(0) \\ \mathcal{D}^{(1)}(u) \approx \mathcal{D}^{(1)}(0) + u(\partial_u \mathcal{D}^{(1)})(0) \end{cases} \quad (\text{IV.6.1-19})$$

En portant (IV.6.1-19) dans (IV.6.1-18), on déduit alors aisément la décomposition du terme source \tilde{S}_{\parallel} sur la base des états propres (IV.6.1-17) de l'opérateur de Liouville \mathcal{L} :

$$\tilde{S}_{\parallel}(\tilde{p}) \approx -\hbar k \Gamma' \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0) / U_0 \right) \pi_1(\tilde{p}) + \sum_{n>1} c_n \pi_n(\tilde{p}) \quad (\text{IV.6.1-20})$$

où $U_0 = \hbar |\Delta'| / 2E_R$, et où c_n représente un nombre complexe indépendant de \tilde{p} . Il est alors immédiat d'obtenir l'expression de la modification de la distribution d'impulsion par l'onde sonde :

$$\tilde{\pi}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \approx -\hbar k \Gamma' \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0) / U_0 \right) \frac{\pi_1(\tilde{p})}{i\delta - \alpha/M} + \sum_{n>1} c_n \frac{\pi_n(\tilde{p})}{i\delta + \lambda_n} \quad (\text{IV.6.1-21})$$

(iii) Spectre de transmission de l'onde sonde

La modification de la matrice densité atomique totale par l'onde sonde étant entièrement caractérisée, nous sommes en mesure de déterminer l'expression du transfert de puissance vers l'onde sonde. Nous savons que ce transfert fait intervenir la valeur moyenne de l'opérateur \wp_{\parallel} (Eq. (R.5.7)) dont l'expression dans le référentiel du laboratoire est, pour une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$:

$$\wp_{\parallel} = \frac{1}{24} \left(16I + 10J_z / \hbar - (J_+ J_- + J_- J_+) / \hbar^2 + 2e^{-2ikZ} (J_-)^2 / \hbar^2 \right) \quad (\text{IV.6.1-22})$$

Chacun des termes de (IV.6.1-22) décrit un processus de diffraction des ondes pompes contribuant *a priori* au transfert de puissance vers la sonde. La dépendance spatiale en e^{-2ikZ} du dernier terme de (IV.6.1-22) indique un processus de diffraction vers l'arrière de l'onde pompe se propageant en direction opposée à l'onde sonde, et dont la polarisation est modifiée par l'alignement du milieu induit par la sonde. Les autres termes, indépendants de Z , décrivent l'interaction de l'onde pompe se propageant dans le même sens que l'onde sonde avec les modulations de populations (premier terme), d'orientation (second terme), et d'alignement (troisième terme) induites par le faisceau sonde. En raison de la conservation de la population totale, le premier terme de (IV.6.1-22) ne contribue pas au transfert de puissance. De plus, on

constate que les troisième et dernier termes ont une contribution faible comparés au second. On peut donc considérer en bonne approximation que la structure Rayleigh stimulée des spectres de transmission est due uniquement à l'existence d'une orientation totale du milieu modulée par l'onde sonde, dont nous savons qu'elle résulte d'une modification de la distribution d'impulsion de la mélasse. On retrouve ainsi l'interprétation donnée au §IV.5.2.

En utilisant les Eqs (R.6.5) et (IV.6.1-21), il est immédiat de montrer qu'à la limite des grands désaccord à résonance et en négligeant les ailes des résonances Raman stimulées, la densité de puissance transférée vers l'onde sonde est de la forme [Rq.IV-22] :

$$\mathcal{P} \approx N \hbar \omega |\Delta'| \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \frac{\partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0)}{U_0} \right) \frac{-\delta \Gamma'}{\delta^2 + (\alpha/M)^2} \text{Tr} \left[\mathcal{V}^\dagger \rho_{\parallel} \mathcal{V} \left(\hbar k \partial_{\bar{p}} \bar{W}_{0, \text{st}}^{(0)} \right) (0) \right] \int \bar{\pi}_{\text{st}}^{(0)}(\bar{p}) d\bar{p} \quad (\text{IV.6.1-23})$$

L'expression (IV.6.1-23) montre en particulier que le transfert de puissance est proportionnel à la population totale des états atomiques externes, et que seul le mode dynamique de taux de relaxation α/M donne une contribution non nulle. En utilisant le fait que $\partial_{\bar{p}} \bar{W}_{0, \text{st}}^{(0)}$ est lié à la création d'une orientation dans le niveau fondamental d'un atome en mouvement (Eq. (IV.2.3-7)), on obtient finalement :

$$\mathcal{P} \approx \frac{50}{17} N E_R \omega \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0)/U_0 \right) \frac{\delta \Gamma'}{\delta^2 + (\alpha/M)^2} \quad (\text{IV.6.1-24})$$

L'expression (IV.6.1-24) exprime bien que la résonance Rayleigh stimulée a une forme dispersive de largeur égale à $2\alpha/M$, conformément à la prédiction du §IV.5.2. On note toutefois qu'à la différence de (IV.5.2-7), l'Eq. (IV.6.1-24) montre une contribution supplémentaire non prise en compte dans la discussion du §IV.5.2, et liée à la modification du coefficient de diffusion en impulsion par l'onde sonde.

Or cette caractéristique a une conséquence importante sur l'allure du spectre de transmission puisque la quantité $\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0)/U_0$ change de signe lorsque U_0 devient suffisamment petit. Nous avons en effet remarqué sur la Fig. IV.6.1-1(b) que $\partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0)$ est une quantité négative, alors que $\mathcal{F}^{(1)}(0)$ est une quantité positive. On peut ainsi attendre un renversement de la structure Rayleigh aux environs de $U_0 \approx 40$. Toutefois, pour une telle valeur de U_0 , la distribution d'impulsion stationnaire est plus large que le domaine de linéarité de la force de $F^{(0)}$, si bien que la limite (IV.6-1) et par suite le modèle considéré ici deviennent

[Rq.IV-22] A la limite des grands désaccords à résonance, il est possible de négliger la partie imaginaire de $\mathcal{D}^{(1)}$ devant sa partie réelle.

contestables [Rq.IV-23]. Précisons tout de même qu'un tel phénomène de renversement de la résonance Rayleigh a été observé expérimentalement sur la transition $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ du césium [Lou92] (voir annexe A.IV, Fig. 3) [Rq.IV-24].

6.2. Configuration de polarisation \perp

Le calcul des spectres de transmission de la sonde dans la configuration de polarisation \perp présente une différence fondamentale par rapport au cas précédent en raison de la création par l'onde sonde de cohérences $\tilde{C}^{(1)}(\tilde{p})$ entre les états externes $|\tilde{p} + \hbar k\rangle$ et $|\tilde{p} - \hbar k\rangle$. La matrice densité totale du système $\tilde{\sigma}_{st}$ prend ainsi la forme :

$$\tilde{\sigma}_{st}(\tilde{p}) = \tilde{\sigma}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) + \varepsilon \left[\tilde{\sigma}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) e^{-i\delta t + 2ik(\tilde{p}/M)t} + \left(\tilde{\sigma}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \right)^\dagger e^{i\delta t - 2ik(\tilde{p}/M)t} \right] \quad (\text{IV.6.2-1})$$

où $\tilde{\sigma}_{st}^{(0)}$ est toujours donnée par (IV.6.1-6), mais où $\tilde{\sigma}_{st}^{(1)}$ s'exprime à présent :

$$\tilde{\sigma}_{st}^{(1)} = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(\tilde{p}) + \tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(\tilde{p}) \quad (\text{IV.6.2-2})$$

D'après la structure de (IV.6.2-2) et les résultats du paragraphe précédent, nous constatons que le calcul des spectres Raman est tout à fait analogue à celui de la configuration de polarisation \parallel , la seule différence résidant dans l'existence d'un phénomène d'élargissement Doppler inhomogène des résonances déjà mentionné (et provenant de l'implication de l'impulsion atomique dans la dépendance temporelle de (IV.6.2-1)). La seule véritable difficulté est liée au calcul de la structure centrale qui nécessite la détermination des cohérences externes $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$. Nous avons vu au §IV.4.2 que de telles cohérences sont liées à l'existence d'une modulation spatiale de la densité atomique à l'échelle de $\lambda/2$ (voir Eq. (IV.4.2-2)). Nous allons donc tout d'abord déterminer l'origine de cette modulation de densité, puis nous en déduisons un moyen d'estimer les cohérences $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$.

[Rq.IV-23] Nous n'avons pas tenté de calculs rigoureux des spectres Rayleigh de transmission de l'onde sonde en dessous du seuil du mécanisme de refroidissement sub-Doppler σ^+ - σ^- . Il est en effet nécessaire de tenir compte de la force de friction Doppler habituelle, ce qui complique notablement le modèle.

[Rq.IV-24] Notons que ce renversement pourrait également être la manifestation d'une résonance Raman induite par le recul liée à l'utilisation d'un angle non nul entre les ondes pompes et sonde.

a. Origine de la modulation spatiale de densité

Considérons l'onde stationnaire polarisée σ^- résultant de la superposition du faisceau sonde et de l'onde pompe se propageant en sens opposés. L'intensité de cette onde présente une partie modulée temporellement et spatialement proportionnelle à $\varepsilon \cos(\delta t - 2kz)$, qui se traduit par une modification des déplacements lumineux des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental selon :

$$\begin{cases} E_A = \frac{\hbar\Delta'}{2} + \varepsilon \frac{7\hbar\Delta'}{12} \cos(\delta t - 2kz) \\ E_0 = \frac{\hbar\Delta'}{2} + \varepsilon \frac{\hbar\Delta'}{2} \cos(\delta t - 2kz) \\ E_S = \frac{2\hbar\Delta'}{3} + \varepsilon \frac{7\hbar\Delta'}{12} \cos(\delta t - 2kz) \end{cases} \quad (\text{IV.6.2-3})$$

L'expression (IV.6.2-3) montre que l'onde sonde induit une modulation *spatiale* des déplacements lumineux. Comme dans le cas du refroidissement "Sisyphé" (voir §III.2), cette modulation va induire des processus de redistribution stimulée de photons entre l'onde sonde et l'onde pompe se propageant en sens opposé, s'accompagnant d'un échange d'impulsion de $\pm 2\hbar k$, et se traduisant par une force dipolaire agissant sur les atomes. Il est possible de montrer que cette force est égale à la somme des gradients des déplacements lumineux (IV.6.2-3) pondérés par les populations stationnaires (IV.2.2-1) des niveaux correspondant [Coh92]. Elle est donc proportionnelle à $\sin(\delta t - 2kz)$, et induit une modulation spatio-temporelle de la densité atomique de période spatiale $\lambda/2$ et de fréquence δ .

Pour résumer, la force totale exercée sur les atomes en présence de la sonde est de la forme :

$$\mathcal{F} = \mathcal{F}^{(0)} + \varepsilon \left(\mathcal{F}^{(1)} e^{-i(\delta - 2k\tilde{p}/M)t} + \left(\mathcal{F}^{(1)} \right)^* e^{i(\delta - 2k\tilde{p}/M)t} \right) \quad (\text{IV.6.2-4})$$

où l'effet de la modulation spatiale des déplacements lumineux par l'onde sonde est entièrement caractérisé par la force sans dimension $\mathcal{F}^{(1)}$ qui s'exprime à l'ordre le plus bas en u et en Γ/Δ par :

$$\mathcal{F}^{(1)} \approx i \frac{10|\Delta|}{17\Gamma} \quad (\text{IV.6.2-5})$$

Nous allons voir à présent que la connaissance de cette force permet d'obtenir une estimation des cohérences $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$.

b. Équation d'évolution des cohérences externes

Nous remarquons tout d'abord que la modulation spatiale de la densité atomique est caractérisée par le vecteur d'onde $2k$, et donc qu'en vertu des résultats du §IV.4.2 le phénomène de diffusion spatiale ne joue pas de rôle dans la relaxation des cohérences $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$ ($2k\bar{v} \gg \alpha/M$ dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$). Il n'est donc pas possible de décrire l'évolution temporelle des cohérences sous la forme d'une équation de Fokker-Planck du type de (IV.6.1-1), car une telle équation repose sur l'existence d'un processus de diffusion dans le milieu. La détermination rigoureuse de ces cohérences à partir d'une description entièrement quantique de la mélasse étant assez complexe numériquement, nous nous sommes limités à un modèle simplifié permettant d'estimer l'ordre de grandeur de $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$.

Le principe de ce modèle est le suivant. Les cohérences $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$ impliquant des niveaux d'énergie ayant une largeur de l'ordre de α/M , nous nous attendons à ce que leur taux caractéristique de relaxation γ soit de l'ordre de α/M . Nous savons d'autre part que la valeur stationnaire de ces cohérences en l'absence de sonde est rigoureusement nulle (la mélasse étant invariante par translation spatiale dans le référentiel tournant). Compte tenu de ces propriétés, et par analogie avec l'Eq. (IV.6.1-14), on peut s'attendre à ce que les cohérences $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$ soient solutions en première approximation d'une équation de la forme :

$$i[\delta - 2k(\tilde{p}/M)]\tilde{C}_{st}^{(1)} - \gamma\tilde{C}_{st}^{(1)} = \tilde{S}_{\perp} \quad (\text{IV.6.2-6})$$

Le premier terme de gauche de l'Eq. (IV.6.2-6) décrit l'évolution hamiltonienne des cohérences à la fréquence $\delta - 2k\tilde{p}/M$, et \tilde{S}_{\perp} est le terme source pour les cohérences. Par analogie avec l'expression (IV.6.1-18), on attend que \tilde{S}_{\perp} soit de la forme :

$$\tilde{S}_{\perp} = \partial_{\tilde{p}}(F^{(1)}\tilde{\pi}_{st}^{(0)}) \quad (\text{IV.6.2-7})$$

où $F^{(1)}$ n'est autre que la modification de la force de ralentissement (IV.6.2-5) précédemment évaluée [Rq.IV-25].

L'évaluation des cohérences $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$ à partir de (IV.6.2-6) et (IV.6.2-7) est alors immédiate et conduit à :

[Rq.IV-25] Nous n'avons pas retenu dans le terme source la contribution liée à la modification du coefficient de diffusion en impulsion par l'onde sonde car comme nous l'avons remarqué, cette diffusion n'est pas impliquée dans l'évolution temporelle des cohérences.

$$\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \approx \frac{\hbar k \Gamma' \mathcal{F}^{(1)}(0) \partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi}_{st}^{(0)}}{i(\delta - 2k\tilde{p}/M) - \gamma} \quad (\text{IV.6.2-8})$$

qui montre que les cohérences $\tilde{C}_{st}^{(1)}$ sont proportionnelles à la *dérivée* de la distribution stationnaire d'impulsion $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p})$. Cette propriété est liée au fait que les taux de transition des processus Raman induits par le recul sont proportionnels à la différence de populations entre états externes.

c. Résonance Raman induite par le recul

Les cohérences $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$ étant évaluées, nous sommes en mesure de caractériser les processus de transfert de puissance vers l'onde sonde. Comme au §IV.6.1.b, nous utilisons l'expression (R.5.7) de l'opérateur \wp_{\perp} décrivant les différents mécanismes de diffraction des ondes pompes responsables du transfert. Dans le référentiel du laboratoire, \wp_{\perp} est donné par :

$$\wp_{\perp} = \frac{1}{24} \left(16 I e^{-2ikz} - 10 e^{-2ikz} J_z / \hbar - e^{-2ikz} (J_+ J_- + J_- J_+) / \hbar^2 + 2 (J_+)^2 / \hbar^2 \right) \quad (\text{IV.6.2-9})$$

Le dernier terme de (IV.6.2-9), qui ne possède pas de dépendance spatiale, décrit la modification de polarisation subie par l'onde pompe se propageant dans la même direction que l'onde sonde en raison de l'alignement induit dans le milieu par la sonde. Les autres termes proportionnels à e^{-2ikz} rendent compte des processus de diffraction vers l'arrière de l'onde pompe se propageant en sens opposé à la sonde sur les modulations spatiales de densité (premier terme), d'orientation (second terme), et d'alignement (troisième terme). Les trois derniers termes de (IV.6.2-9) ont une faible contribution en comparaison avec le premier terme (à la limite (IV.6-1), l'orientation des atomes est de l'ordre de $u\hbar \ll \hbar$ (voir Eq. (IV.2.3-7)). On peut donc considérer que la résonance centrale des spectres de transmission dans la configuration de polarisation \perp est liée à la *modulation spatiale de la densité atomique* induite par l'onde sonde dans la mélasse.

En portant (IV.6.2-8) dans (R.5.6), nous trouvons alors qu'à la limite des grands désaccords à résonance, et en négligeant les ailes des résonances Raman, la densité de puissance transférée vers l'onde sonde s'écrit :

$$\mathcal{P} \approx N \hbar \omega \Delta' \text{Im} \left[\hbar k \Gamma' \mathcal{F}^{(1)}(0) \int \frac{\partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi}_{st}^{(0)}}{i(\delta - 2k\tilde{p}/M) - \gamma} \text{Tr} \left[\mathcal{V}^\dagger \wp_{\perp} \mathcal{V} \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(\tilde{p}) \right] d\tilde{p} \right] \quad (\text{IV.6.2-10})$$

En utilisant les expressions (IV.6.1-10) et (IV.6.2-5), et en effectuant l'intégration par la méthode employée au §I.4.3, (IV.6.2-10) se réduit sous la forme :

$$\mathcal{P} \approx N \hbar \omega \Delta' \frac{5\sqrt{\pi/2}}{17} \frac{\hbar|\Delta'|}{k_B T} \frac{\delta}{2k\bar{v}} e^{-\delta^2/2(2k\bar{v})^2} \text{Tr} \left[\mathcal{V}^\dagger \rho_\perp \mathcal{V} \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(M\delta/2k) \right] \quad (\text{IV.6.2-11})$$

Finalement, en faisant l'approximation $\tilde{W}_{0,st}^{(0)}(M\delta/2k) \approx \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(0)$, nous trouvons que la densité de puissance transférée vers l'onde sonde se réduit à :

$$\mathcal{P} \approx N \hbar \omega \Delta' \frac{50\sqrt{\pi/2}}{289} \frac{\hbar|\Delta'|}{k_B T} \frac{\delta}{2k\bar{v}} e^{-\delta^2/2(2k\bar{v})^2} \quad (\text{IV.6.2-12})$$

Il est intéressant de remarquer dans l'expression (IV.6.2-12) la présence du facteur $\hbar|\Delta'|/k_B T$ correspondant au rapport de la profondeur du potentiel associé aux déplacements lumineux induits par l'onde sonde (normalisée à ε), et l'énergie d'agitation thermique $k_B T$. Nous avons en effet montré au §II.3.2 que ce rapport caractérise l'efficacité de la modulation spatiale de densité par l'onde sonde, et donc l'importance de la résonance Raman induite par le recul.

7. Conclusion

Nous avons donné dans ce chapitre une interprétation physique des spectres de transmission de l'onde sonde à travers une mélasse optique 1D $\sigma^+ - \sigma^-$, en considérant le cas d'une transition atomique $J_g=1 \rightarrow J_e=2$. Les spectres présentent des résonances différentes selon que la polarisation de l'onde sonde est \parallel ou \perp à celle de l'onde pompe se propageant dans le même sens qu'elle. Ces résonances fournissent des informations importantes sur les propriétés de la mélasse :

- L'existence de transitions Raman stimulées prouve l'existence de sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental ayant des populations et des déplacements lumineux différents.
- Dans la configuration de polarisation \parallel , la largeur de la résonance Rayleigh stimulée donne un accès expérimental direct au coefficient de friction de la force de refroidissement.
- Dans la configuration de polarisation \perp , une résonance Raman induite par le recul est prévue au centre des spectres. Sa largeur donne accès à la largeur Doppler et donc à la température de la mélasse (elle n'a toutefois pas été observée expérimentalement).
- La différence de largeur des résonances Raman dans les configurations de polarisation \parallel et \perp permet d'estimer la température de la mélasse.

**MEASUREMENT OF THE
FRICTION COEFFICIENT
IN 1D CORKSCREW OPTICAL
MOLASSES BY STIMULATED
RAYLEIGH SPECTROSCOPY
(Réf. [Lou92])**

Première observation expérimentale d'une résonance Rayleigh stimulée sur le spectre de transmission d'une onde sonde à travers une mélasse tire-bouchon unidimensionnelle d'atomes de césium. La largeur de cette résonance, de forme dispersive, donne directement accès au coefficient de friction de la force de refroidissement, avec un accord quantitatif avec la théorie meilleur que 10%. Cette résonance est très sensible à l'efficacité du mécanisme de refroidissement sub-Doppler. L'interprétation théorique de ces résultats expérimentaux a fait l'objet d'un article théorique (Annexe B.IV).

Measurement of the Friction Coefficient in 1D Corkscrew Optical Molasses by Stimulated Rayleigh Spectroscopy

B. Lounis,⁽²⁾ J.-Y. Courtois,⁽¹⁾ P. Verkerk,⁽¹⁾ C. Salomon,⁽²⁾ and G. Grynberg⁽¹⁾

⁽¹⁾Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure, Université Pierre et Marie Curie, Case 74, F-75252 Paris CEDEX 05, France

⁽²⁾Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure, 24, rue Lhomond, F-75231 Paris CEDEX 05, France
(Received 31 July 1992)

The transmission spectrum of a probe beam interacting with one-dimensional cesium optical molasses made from two circularly cross-polarized cooling beams (corkscrew molasses) displays a narrow (≈ 30 – 70 kHz) Rayleigh resonance. From the width of this resonance we deduce the friction coefficient of the cooling force to be $\alpha = (5.8 \pm 0.4) \hbar k^2$ for a detuning from resonance equal to 3Γ . This value is in quantitative agreement with theoretical predictions. We also show that the shape of the Rayleigh resonance depends dramatically on the efficiency of the sub-Doppler cooling mechanism.

PACS numbers: 32.80.Pj, 32.70.Jz, 42.65.-k

Laser cooling of neutral atoms has been a subject of considerable interest during the last few years [1]. In particular, a large number of experiments have focused on temperature measurements of three-dimensional (3D) optical molasses [2], providing important qualitative tests of the sub-Doppler cooling mechanisms. However, a quantitative comparison between experiment and theory remains a challenge because of the lack of 3D models. By contrast, the possibility to obtain one-dimensional optical molasses in a transient way [3–5] by taking advantage of the high density [6] and large number [7] of cold atoms achievable in magneto-optical traps permits quantitative tests of 1D theories [8–10]. For example, quantization of the atomic motion in 1D lin \perp lin optical molasses was observed in pump-probe experiments [4,11] or by analyzing the fluorescence of the molasses [5]. We present here an experimental investigation of 1D σ^+ - σ^- molasses which is very different from lin \perp lin molasses because of the absence of atom localization. Using probe transmission spectroscopy, we observe Raman resonances due to the occurrence of differently populated and light-shifted ground-state Zeeman sublevels and a narrow (≈ 30 – 70 kHz) Rayleigh resonance. We prove that the width of this resonance is equal to $2\alpha/M$, where α is a friction coefficient of the cooling force and M is the atomic mass. Our measured value of α and its dependence on laser intensity and detuning are found in quantitative agreement with the recent theory of Castin [12] to better than 10%. This method thus gives direct access to the cooling mechanism alone, by contrast with temperature measurements which are sensitive to the balance between heating and cooling effects.

The principle of our experiment is to probe 1D σ^+ - σ^- optical molasses with a weak beam. The molasses is obtained as follows: Cesium atoms are cooled and trapped by three pairs of σ^+ - σ^- counterpropagating beams in a magneto-optical trap. After this loading and cooling phase both the inhomogeneous magnetic field and the trapping beams are completely switched off [13]. A pump wave of frequency ω made of two counterprop-

agating beams having σ^+ - σ^- polarizations is then switched on. 1D optical molasses is thus achieved in a transient way (typically 15 ms during which the atomic density decreases slowly). We monitor the transmitted intensity of a weak traveling probe wave frequency ω_p making a 5° angle with the pump wave. The cooling beams as well as the beams of frequencies ω and ω_p are derived from a stabilized diode laser and are tuned to the red side of the $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 6P_{3/2}(F'=5)$ transition. Typical intensities for the pump and probe beams are, respectively, $I=10$ mW/cm² and $I_p=0.1$ mW/cm². We show in Fig. 1 the probe transmission spectrum versus

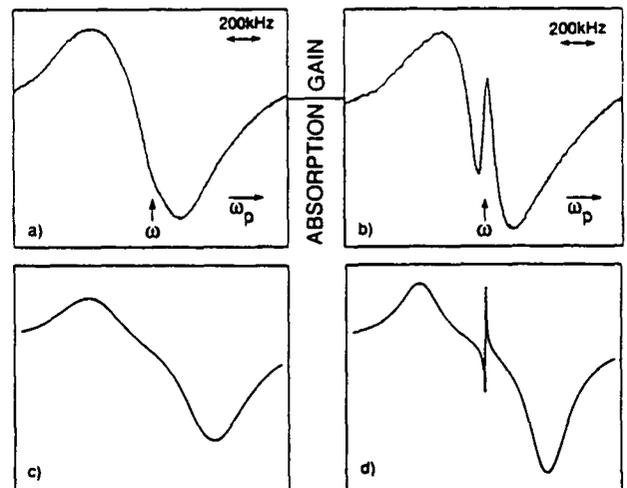


FIG. 1. Probe transmission spectra through 1D σ^+ - σ^- optical molasses for two different polarizations of the probe beam. (a),(b) Experimental recordings obtained for a pump intensity equal to 10 mW/cm² and a detuning $\Delta = -2\Gamma$. (c),(d) Associated theoretical spectra calculated for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ transition. (a) [(b)] The probe has a circular polarization orthogonal (parallel) to that of the copropagating cooling beam. The theoretical Rayleigh resonance appears much narrower than the experimental curve. This is because the friction coefficient for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ transition is about 10 times smaller than in the case of a $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ transition.

$\omega_p - \omega$ for two different polarizations of the probe beam and for a detuning from resonance $\Delta = -2\Gamma$ (where $\Gamma/2\pi = 5.3$ MHz is the natural linewidth of the excited state). Figure 1(a) corresponds to the case where the probe has a circular polarization orthogonal to that of the beam ω which propagates in the same direction. For this situation the absorption varies smoothly around $\omega_p - \omega = 0$ with a maximum for $\omega_p = \omega + \Omega_R$ and a minimum for $\omega_p = \omega - \Omega_R$. These structures have already been reported in 3D experiments [14,15] and interpreted in terms of stimulated Raman processes between differently populated and light-shifted ground-state Zeeman sublevels [15]. Figure 1(b) corresponds to the case where the probe beam has the same circular polarization as the copropagating cooling beam ω . In this situation, the probe absorption spectrum exhibits the preceding Raman resonances and an additional narrow dispersionlike Rayleigh resonance (width ≈ 70 kHz). As long as the sub-Doppler cooling mechanism is efficient, this structure holds and its width varies as $1/\Delta$ and is independent of I , as shown in Fig. 2.

We now sketch an interpretation of these spectra by indicating a few elements of a full theoretical treatment which will be published in a forthcoming article. Consider the simple case of a $J_g = 1 \rightarrow J_e = 2$ atomic transition with cooling beams having the same intensity and all

laser beams being collinear (along the Oz axis). To interpret the origin and the different features of the central resonance of Fig. 1(b), we combine the probe beam with the cooling beam that propagates in the same direction. One then obtains a circularly polarized beam whose intensity exhibits a time-modulated component at frequency $\delta = \omega_p - \omega$. The modification of the light shifts of the ground-state Zeeman sublevels by this beam can be described by a fictitious magnetic field [16] oscillating at frequency δ along the direction of propagation Oz of the laser beams [17]. In the rotating frame attached to the atom moving with velocity v along Oz [8], the Hamiltonian part of the atom-field coupling is

$$H = H_0 + kvJ_z - \Omega_B \cos(\delta t)J_z, \quad (1)$$

where H_0 includes the reactive effects of the pump beams (light shifts Δ'), and J_z stands for the component of the atomic angular momentum along Oz. The second term of the right-hand side of (1) corresponds to the inertial term discussed in [8]. The third term, where Ω_B is proportional to the probe amplitude, describes the effect of the fictitious magnetic field. In the limit where $|\delta| \ll \Delta'$ the internal state of the atom follows adiabatically the time evolution of H . Following [8], one derives the mean value of the longitudinal angular momentum for an atom of velocity v :

$$\langle J_z(v) \rangle \propto \hbar \frac{kv - \Omega_B \cos(\delta t)}{\Delta'} \quad (2)$$

From the expression of $\langle J_z(v) \rangle$, one can deduce the average force due to the radiation pressure experienced by an atom of velocity v [8]:

$$F = -av + (f_P + f_B)\cos(\delta t), \quad (3)$$

where $\alpha \propto \hbar k^2 \Gamma / \Delta$ is the friction coefficient of the cooling force due to the pump beams. f_P and f_B account for the modification of the radiation pressure due to the probe beam. Because our approach is linear in the probe amplitude this modification arises from only two processes. First, f_P originates from the interference of the probe and the copropagating pump beams which causes the intensity and hence the radiation pressure on an atom (whose internal state is determined by the cooling beams) to oscillate at frequency δ . Second, it is well known from the theory of cooling in 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ molasses [8,9] that any modification of the atomic internal state results in a modification of the radiation pressure. The component f_B ($\propto \Omega_B \hbar k \Gamma / \Delta$) is associated with such an effect: The perturbation of the internal state by the probe-induced fictitious magnetic field leads to a modification of the radiation pressure of the cooling beams. In steady state, the average velocity \bar{v} of the molasses is obtained by solving the equation of dynamics. This yields

$$\bar{v} = \frac{f_P + f_B}{M} \frac{1}{\delta^2 + (\alpha/M)^2} [\delta \sin(\delta t) + (\alpha/M) \cos(\delta t)]. \quad (4)$$

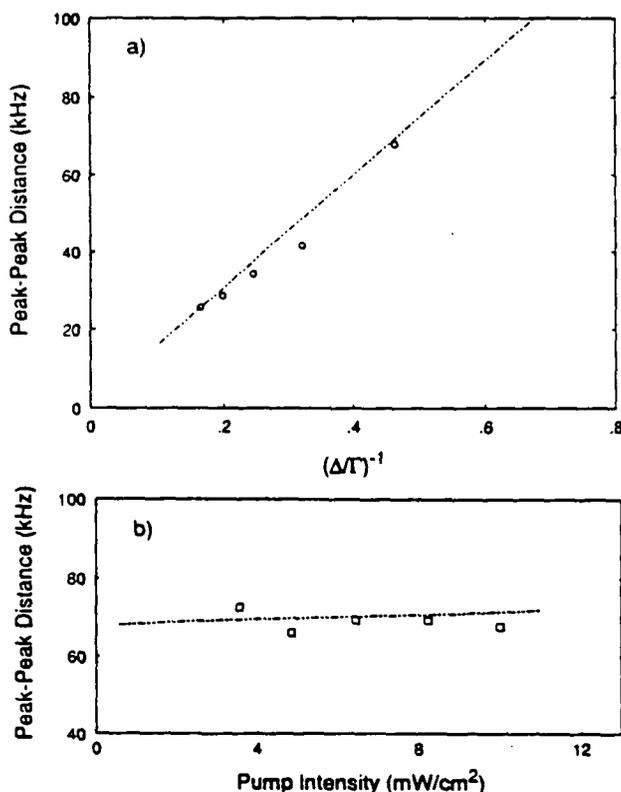


FIG. 2. Dependence of the width of the Rayleigh resonance (a) on the detuning from resonance Δ and (b) on the laser intensity I . The dashed lines correspond to the theoretical predictions of Castin.

Experiments performed with a real static longitudinal magnetic field B_0 [18] have demonstrated a locking of the mean atomic velocity around a value proportional to B_0 . In the present situation, the mean velocity oscillates at frequency δ and is dephased with respect to the fictitious magnetic field because of the finite response time (M/a) of the atomic velocity. The average longitudinal angular momentum of the molasses is expected to be on the order of $\langle J_z(\bar{v}) \rangle$ which is deduced from Eqs. (2) and (4):

$$\langle J_z(\bar{v}) \rangle \propto \frac{\hbar k}{M\Delta'} \left[\frac{(f_P + f_B)\delta}{(\alpha/M)^2 + \delta^2} \sin(\delta t) + \frac{(\alpha/M)f_P - (M/a)\delta^2 f_B}{(\alpha/M)^2 + \delta^2} \cos(\delta t) \right]. \quad (5)$$

The polarization P of the atomic sample induced by a circularly polarized light depends on $\langle J_z \rangle$ because the Clebsch-Gordon coefficients are not the same for transitions starting from different Zeeman sublevels of the ground state [$P \propto (\chi_0 + \chi_1 \langle J_z \rangle) E$]. The energy transfer between the probe and the medium is

$$\propto \overline{E_p dP/dt} = \chi_1 \overline{E_p E d\langle J_z \rangle / dt},$$

and thus arises only from the component of $\langle J_z(\bar{v}) \rangle$ which is $\pi/2$ phase shifted with respect to the modulated part $E_p E$ of the incident field intensity. The Rayleigh resonance is thus a dispersive curve [19] with peak-to-peak distance equal to $2\alpha/M$. Whereas this energy transfer is only sensitive to the $\sin(\delta t)$ component of $\langle J_z(\bar{v}) \rangle$, other signals such as the four-wave-mixing phase conjugation that we also observed depend on both components of $\langle J_z(\bar{v}) \rangle$. As shown in [8,12] α/M is predicted to be independent of the pump beams' intensity and to vary as $1/\Delta$. Our experimental observations (Fig. 2) confirm these predictions and validate the interpretation of the Rayleigh resonance [20]. Our measured value of α is [21]

$$\alpha/M\Gamma \approx (13.4 \pm 0.8) \times 10^{-3} \Gamma/\Delta$$

and is in good quantitative agreement with a theoretical calculation performed by Castin [12] in the case of a $F=4 \rightarrow F'=5$ transition, which predicts a slope of 14.1×10^{-3} . Note that this value is a factor of 10 larger than the value predicted for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ transition. The interpretation of the central resonance is also supported by a more rigorous calculation based on a Fokker-Planck equation for the atomic momentum distribution, performed for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ transition, which allows one to reproduce probe transmission spectra in good qualitative agreement with the experiment [Fig. 1(d)].

In the rotating frame attached to the atomic rest frame the pump wave keeps a *fixed* linear polarization, so that the Hamiltonian part of the atom-cooling field interaction is completely space independent and couples a small number of levels belonging to the same closed family [8]. Because the interaction between the probe field and the atoms is also space independent in the rotating frame for the polarization configuration of Fig. 1(b), the probe beam can only induce stimulated transitions between levels belonging to the same family. In contrast, in the polarization configuration of Fig. 1(a), the atom-probe field coupling exhibits a spatial dependence of the form e^{2ikz} in

the rotating frame. The probe beam thus induces stimulated transitions between states of *different* families whose energy separation is roughly proportional to the atomic velocity. As a result, the resonances of the probe transmission spectrum of Fig. 1(a) are more sensitive to the Doppler broadening and appear broader than in Fig. 1(b). A calculation of the probe transmission spectrum performed by using the atomic momentum distribution derived from a Fokker-Planck equation and by neglecting recoil-induced resonances [22] is shown in Fig. 1(c). The Raman resonances actually appear broader than in Fig. 1(d), and the difference of width between the two polarization configurations of the probe beam is related to the longitudinal Doppler width of the optical molasses [21].

We now describe what is observed near the sub-Doppler cooling threshold. The central resonance progressively changes shape and finally transforms into an inverted narrower dispersionlike structure (Fig. 3). Below threshold a non-negligible part of the atoms has a momentum out of the capture range of the sub-Doppler cooling force, so that the damping rate of the probe-induced momentum modification is now affected by the weaker *Doppler* cooling friction force [8]. However, the observation of a width proportional to the Doppler fric-

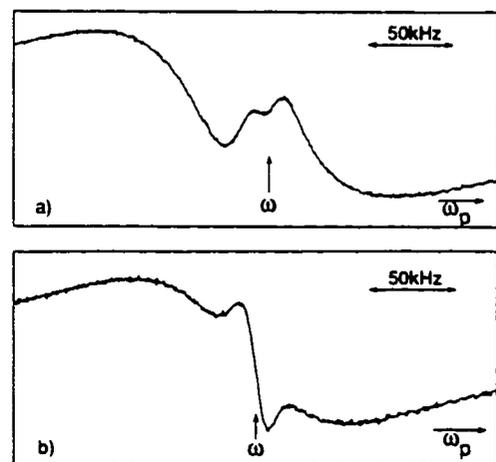


FIG. 3. Central resonance near the sub-Doppler cooling threshold. The pump polarization of the probe beam is the same as in Fig. 1(b), and the detuning is $\Delta = -3\Gamma$. (a) Pump beam intensity $I = 2.5 \text{ mW/cm}^2$ (near threshold). (b) $I = 1.6 \text{ mW/cm}^2$ (below threshold). Note that the narrower resonance is inverted.

tion coefficient is hidden by other broadening mechanisms and in particular by the residual transverse Doppler broadening.

In conclusion, we have demonstrated that Rayleigh spectroscopy is a powerful and convenient method to measure directly the friction coefficient of the sub-Doppler cooling force in $\sigma^+ - \sigma^-$ molasses. The good agreement with theoretical predictions obtained both for $\sigma^+ - \sigma^-$ and for $\text{lin} \perp \text{lin}$ [11] molasses proves that the physical characteristics of 1D optical molasses are now well understood. Pump-probe experiments appear to be a technique of remarkable interest to investigate the properties of optical molasses and we are currently performing similar experiments in 2D and 3D configurations. In fact, using a molasses made of three pairs of counterpropagating $\sigma^+ - \sigma^-$ beams and using a probe beam having the same circular polarization as a copropagating molasses beam, we have observed a central resonance having a width as narrow as 400 Hz [23]. The fact that this width is more than 1 order of magnitude smaller than the width obtained in 1D molasses may be related to the fact that the 3D sub-Doppler friction coefficient is much smaller than the 1D friction coefficient [24]. However, this interpretation still needs to be confirmed by theoretical calculations.

We would like to thank C. Cohen-Tannoudji and Y. Castin for many helpful discussions. Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne is a unité de recherche de l'École Normale Supérieure et de l'Université Pierre et Marie Curie, associée au CNRS. This work has been supported by DRET (No. 89214) and CNES (No. 910414).

- [1] See, for instance, J. Opt. Soc. Am. B 6, special issue on laser cooling and trapping of atoms, edited by S. Chu and C. Wieman (1989); C. Cohen-Tannoudji and W. D. Phillips, Phys. Today 43, No. 10, 33 (1990).
- [2] S. Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, A. Cable, and A. Ashkin, Phys. Rev. Lett. 55, 48 (1985); P. Lett, R. Watts, C. Westbrook, W. D. Phillips, P. Gould, and H. Metcalf, Phys. Rev. Lett. 61, 169 (1988); C. Salomon, J. Dalibard, W. Phillips, A. Clairon, and S. Guellati, Europhys. Lett. 12, 683 (1990).
- [3] D. S. Weiss, E. Riis, Y. Shevy, P. J. Ungar, and S. Chu, J. Opt. Soc. Am. B 6, 2072 (1989).
- [4] P. Verkerk, B. Lounis, C. Salomon, C. Cohen-Tannoudji, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg, Phys. Rev. Lett. 68, 3861 (1992).
- [5] P. S. Jessen, C. Gerz, P. D. Lett, W. D. Phillips, S. L. Rolston, R. J. C. Spreeuw, and C. I. Westbrook, Phys. Rev. Lett. 69, 49 (1992).

- [6] E. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, and D. Pritchard, Phys. Rev. Lett. 59, 2631 (1987); T. Walker, D. Sesko, and C. Wieman, Phys. Rev. Lett. 64, 408 (1990).
- [7] K. E. Gibble, S. Kasapi, and S. Chu, Opt. Lett. 17, 526 (1992).
- [8] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, J. Opt. Soc. Am. B 6, 2023 (1989).
- [9] P. J. Ungar, D. S. Weiss, E. Riis, and S. Chu, J. Opt. Soc. Am. B 6, 2059 (1989).
- [10] Y. Castin and J. Dalibard, Europhys. Lett. 14, 761 (1991).
- [11] J.-Y. Courtois and G. Grynberg, Phys. Rev. A (to be published).
- [12] Y. Castin (private communication).
- [13] Contrary to the case of $\text{lin} \perp \text{lin}$ molasses [4], probe transmission spectra are dramatically modified by the presence of any residual trapping field, so that it is essential to totally switch off the trapping beams. This is the main reason why a central structure was not distinguishable in preceding experiments [4].
- [14] J. W. R. Tabosa, G. Chen, Z. Hu, R. B. Lee, and H. J. Kimble, Phys. Rev. Lett. 66, 3245 (1991).
- [15] D. Grison, B. Lounis, C. Salomon, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg, Europhys. Lett. 15, 149 (1991).
- [16] C. Cohen-Tannoudji and J. Dupont-Roc, Phys. Rev. A 5, 968 (1972); W. Happer, Rev. Mod. Phys. 44, 169 (1972).
- [17] The tensor part of the light-shift Hamiltonian is smaller than the fictitious magnetic field part because of the Clebsch-Gordan coefficients, and has been omitted in this simple analysis. However, the theoretical spectra of Fig. 1 include both contributions.
- [18] S. Shang, B. Sheehy, H. Metcalf, P. Van der Straten, and G. Nienhuis, Phys. Rev. Lett. 67, 1094 (1991).
- [19] G. Grynberg and P. R. Berman, Phys. Rev. A 39, 4016 (1989); G. Grynberg, M. Vallet, and M. Pinard, Phys. Rev. Lett. 65, 701 (1990).
- [20] The previous analysis only considered the effect of the probe-induced atomic magnetization on the forward scattering of the pump beam copropagating with the probe. Other scattering processes involving the counter-propagating pump beam and the alignment of the atomic sample should also be included to fully describe the central resonance. Nevertheless, the inclusion of these contributions does not invalidate our predictions.
- [21] We have made no correction for the residual transverse Doppler effect due to the nonzero angle between probe and cooling beams which may be estimated to be on the order of a few kHz and which may slightly broaden the Rayleigh resonances.
- [22] J. Guo, P. R. Berman, B. Dubetski, and G. Grynberg, Phys. Rev. A 46, 1426 (1992).
- [23] This resonance has been observed for a detuning $\Delta = -5\Gamma$ and with the probe making a 2° angle with the nearest cooling beam.
- [24] K. Mølmer, Phys. Rev. A 44, 5820 (1991).

**PROBE TRANSMISSION
IN 1D OPTICAL MOLASSES.
THEORY FOR CIRCULARLY CROSS-
POLARIZED COOLING BEAMS
(Réf. [Cou93])**

Étude théorique détaillée des spectres de transmission et de conjugaison de phase d'une onde sonde interagissant avec une mélasse tire-bouchon unidimensionnelle. On considère le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$, et l'on se restreint aux situations pour lesquelles la distribution stationnaire d'impulsion est contenue dans le domaine de linéarité de la force de refroidissement. Dans ces conditions, il est possible de décrire la dynamique des degrés de liberté externes de l'atome au moyen d'une équation de Fokker-Planck, après élimination adiabatique des variables atomiques internes. On étudie d'une part les processus Raman stimulés entre sous-niveaux Zeeman mettant en évidence l'existence de différences de populations et de déplacements lumineux dans l'état fondamental, et d'autre part les processus Rayleigh stimulés donnant accès aux temps de relaxation des variables externes. On envisage deux cas de polarisation pour la sonde, selon que l'onde pompe avec laquelle elle se copropage a une polarisation circulaire identique (cas \parallel) ou opposée (cas \perp) à celle de la sonde. Dans le premier cas, on montre que les résonances Raman ne subissent pas d'élargissement inhomogène, et qu'il est ainsi possible de les décrire en considérant des atomes immobiles. Il est également montré qu'une résonance Rayleigh apparaît sur les spectres, due à la modulation temporelle de la force de refroidissement par la sonde, qui s'accompagne d'une modulation de la distribution d'impulsion atomique. Cette résonance a une largeur proportionnelle au coefficient de friction de la force de refroidissement en l'absence de sonde. Dans le second cas, on met en évidence un processus d'élargissement inhomogène des résonances Raman, ainsi qu'une résonance centrale de type Raman induite par le recul, ayant la forme d'une dérivée de gaussienne de largeur proportionnelle à la largeur Doppler de la mélasse.

PROBE TRANSMISSION IN ONE-DIMENSIONAL OPTICAL MOLASSES THEORY FOR CIRCULARLY CROSS-POLARIZED COOLING BEAMS

J.-Y. Courtois and G. Grynberg

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure
Université Pierre et Marie Curie, Case 74, T 12 - E 01, F-75252 Paris Cedex 05, France

P.A.C.S. 32.80.Pj ; 32.70.Jz ; 42.65-k.

Abstract

We present a detailed theoretical investigation of the absorption spectrum of a probe beam after transmission through a one-dimensional optical molasses obtained with circularly cross-polarized counterpropagating pump beams (corkscrew molasses). The study is performed for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ atomic transition and the external degrees of freedom are described by means of a Fokker-Planck equation in the regime where the stationary momentum distribution lies within the range of linearity of the cooling force. We analyze the stimulated Raman transitions occurring between differently populated and light-shifted ground-state Zeeman sublevels. In the case where the probe beam has the same polarization as the copropagating cooling beam, an additional narrow Rayleigh resonance appears for a probe frequency close to the pump frequency. Its width is equal to $2\alpha/M$ where α is the friction coefficient of the cooling force and M is the atomic mass. In the case where the probe beam has the same polarization as the counterpropagating cooling beam, a central recoil-induced resonance is expected. Its width is related to the Doppler width of the optical molasses.

I. Introduction

During the last past months, important advances have been made in the field of nonlinear optics with cold atoms. The properties of one-dimensional (1D) optical molasses made of two linearly cross-polarized cooling beams have already been fully characterized, both experimentally [1] and theoretically [2]. In such a geometry, the spatial variation of the light-shifts experienced by the atomic ground-state Zeeman sublevels leads to a periodic optical potential. The various resonances displayed on probe transmission spectra are due to stimulated Raman transitions between quantized vibrational levels of the atoms localized at the bottom of the optical potential wells, and to Rayleigh resonances whose widths depend on the dynamics of the atom in these potential wells. Similar resonances have also been observed in the case of 1D MASE (Magnetic Assisted Sisyphus Effect) molasses [3]. The physical properties of σ^+ - σ^- (corkscrew) optical molasses are very different because the optical potential is space-independent [4] and prevents any atom localization from occurring. Recently, Lounis *et al.* [5] have studied the probe absorption by a 1D cesium optical molasses made from two counterpropagating circularly cross-polarized beams. They have observed resonances which can be attributed on one hand to Raman transitions between differently populated and light-shifted ground-state Zeeman sublevels (similar to those previously reported in [6]) and on the other hand to a narrow Rayleigh resonance whose width gives direct access to the friction coefficient of the cooling force. This is the aim of this article to give a detailed interpretation of the position and shape of the resonances that can be observed in this geometry. Our theoretical investigation is based on a description of the atomic external degrees of freedom by means of a Fokker-Planck equation and is performed for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ atomic transition. In section II, we recall the most important features of atoms interacting with σ^+ - σ^- counterpropagating pump beams which are essential for reading this paper, and for understanding the widths of the resonances. We then characterize the typical time-constants involved in the temporal evolution of the atomic system. In section III, we first give a qualitative interpretation of the shape of the probe transmission spectra for different polarization configurations of the probe. We then turn to a more rigorous analysis and we discuss in detail all the important features of the resonances in the case where the stationary momentum distribution lies within the range of linearity of the cooling force.

We aim here at extending the formalism of [7] to the case of pump-probe experiments. Our theoretical description is to first order in the amplitude of the probe field. We are thus in a situation where the linear response theory can be applied [8]. In such a situation, the probe excites some particular evolution modes of the atom in the 1D optical molasses but does not modify its dynamical characteristics. As a consequence, the widths and shapes of the resonances obtained in pump-probe experiments only depend on the atom dynamics in the absence of probe and on the particular dynamical evolution modes that are excited by the probe, depending on its polarization.

By comparison with earlier theoretical descriptions of pump-probe interaction in cold atomic vapors [9], we do not assume any particular form for the momentum distribution (this could be achieved through the interaction with a reservoir at temperature T). By contrast, in our approach, the stationary momentum distribution is derived from the interaction of the atom with the incident fields and is thus a dynamical variable. Contrary to our previous analysis made for 1D $\text{lin}\perp\text{lin}$ molasses [2] which puts the emphasis on the *discrete set of bound states* of the atoms in the optical potential wells, the transitions involving external variables here occur between continuum states since the optical potential is *flat* in corkscrew molasses.

II. Atoms in the presence of the pump beams

Because we study the linear response of the system to the perturbation induced by the probe, we are first interested in the characteristics of the atomic medium in the presence of the pump beams only. Hence, we start by recalling the main features of the interaction between the atoms and the cooling waves, which are fully developed in [7].

A. Presentation of the model

1. Effective Hamiltonian and optical pumping rates

We consider the simple case of a 1D optical molasses in the geometry of σ^+ - σ^- cooling for an atomic transition connecting a $J_g = 1$ ground state to a $J_e = 2$ excited state [4], [10], [7]. The cooling field results from the superposition of two counterpropagating pump waves of wavelength $\lambda=2\pi/k$, travelling along the $+z$ and $-z$ directions. These waves have the same frequency ω , the

same amplitude E_0 , and are respectively σ^+ and σ^- polarized. For an appropriate choice of phase, the resulting cooling field in z can be written:

$$\sqrt{2}E_0(\bar{e}_x \sin(kz) + \bar{e}_y \cos(kz)) \quad (1)$$

It follows that the resulting laser electric field has an amplitude $\sqrt{2}E_0$ independent of z and a linear polarization which rotates by an angle $-kz$ around Oz when z varies, forming an helix of pitch λ (Fig. 1.a).

The atom-field coupling is characterized on one hand by the detuning $\Delta = \omega - \omega_A$ between the pump beams (ω) and the atomic (ω_A) frequency (we assume $\Delta < 0$, atomic cooling occurring on the red side of the resonance) and on the other hand by the saturation parameter of the optical transition:

$$s_0 = \frac{\Omega^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (2)$$

where $\Omega = -2dE_0/\hbar$ is the resonant Rabi frequency which characterizes the coupling between the atomic dipole d and the field, and Γ is the natural width of the excited state. In the following, we restrict ourselves to the low saturation domain:

$$s_0 \ll 1 \quad (3)$$

and to the limit of large detunings:

$$|\Delta| \gg \Gamma \quad (4)$$

which lead to the lowest temperatures [4]. Eq. (3) means that the atoms remain most of the time in the ground-state. This allows an adiabatic elimination of both the optical coherences and the excited state observables. Hence, the atom dynamics is completely described in terms of observables involving the ground state only. Note that in the adiabatic elimination of the optical coherences, we neglect the contribution of the kinetic energy compared to the relaxation of the optical coherences. Our treatment is thus to zeroth order in the small parameter kv/Γ (where v is a typical atomic velocity). In particular, it does not include the usual Doppler cooling [7].

The effect of the atom-cooling field interaction can be split into two parts [11]:

(i) On one hand, the reactive part associated with light-shifts results into an effective Hamiltonian depending on the atomic ground-state Zeeman sublevels (which are labelled $|g, m\rangle$, m

being the magnetic quantum number with the cooling beams direction of propagation taken as the quantization axis):

$$H_{\text{eff}}^{(0)} = \frac{\hbar\Delta'}{2}|g,0\rangle\langle g,0| + \frac{\hbar\Delta'}{2}|\psi_A(z)\rangle\langle\psi_A(z)| + \frac{2\hbar\Delta'}{3}|\psi_S(z)\rangle\langle\psi_S(z)| \quad (5)$$

with
$$|\psi_A(z)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g,1\rangle e^{ikz} - |g,-1\rangle e^{-ikz}) \quad (6)$$

$$|\psi_S(z)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g,1\rangle e^{ikz} + |g,-1\rangle e^{-ikz}) \quad (7)$$

and
$$\Delta' = \Delta s_0 \quad (8)$$

Expression (5) clearly shows that the light-shifts are independent of z , whereas the eigenstates of $H_{\text{eff}}^{(0)}$ depend on z (Fig. 1.b).

(ii) On the other hand, the dissipative part of the atom-field interaction accounts for processes where absorption of a laser photon is followed by spontaneous emission. It describes in particular real transitions between $|g,0\rangle$, $|\psi_A(z)\rangle$ and $|\psi_S(z)\rangle$ (optical pumping) which give rise to finite lifetimes for these levels. This contribution is characterized by the optical pumping rate:

$$\Gamma' = \Gamma s_0 \quad (9)$$

The departure rates from $|g,0\rangle$, $|\psi_A(z)\rangle$, $|\psi_S(z)\rangle$ are respectively equal to $\Gamma'/2$, $\Gamma'/2$, and $2\Gamma'/3$.

2. Internal state for an atom at rest

We consider an atom at rest in z . The steady-state density matrix for the atom which results from the competition between departure and return rates can be easily proved to be diagonal in the basis $\{|g,0\rangle, |\psi_A(z)\rangle, |\psi_S(z)\rangle\}$ with populations:

$$\begin{aligned} \pi_0^{(0)} = \pi_A^{(0)} &= \frac{4}{17} \\ \pi_S^{(0)} &= \frac{9}{17} \end{aligned} \quad (10)$$

In steady-state, an atom at rest thus has *differently populated and light-shifted ground-state sublevels*.

3. Internal state for a moving atom

We consider an atom having velocity v , so that $z = vt$, and we neglect the variation of the atomic velocity during the time required by the internal state to reach a steady-state value. Expression (1) shows that in its rest frame, the atom experiences a laser field whose linear polarization rotates at the angular frequency $-kv$. It is thus particularly convenient to consider a rotating frame attached to the atomic rest frame where the laser field keeps a fixed linear polarization. This change of frame is achievable by means of the unitary transformation:

$$S = e^{ikzJ_z/\hbar} \quad (11)$$

where J_z is the angular momentum operator along the Oz direction. It is straightforward to check that in the new representation, the atom-field interaction Hamiltonian describes the coupling of an atom with an electric field having a *fixed* linear polarization along \bar{e}_y . Note that when quantizing the atomic external degrees of freedom, one has to substitute the position operator Z for z in equation (11).

In the rotating frame, the density matrix of the atom transforms into:

$$\tilde{\sigma}^{(0)} = S^\dagger \sigma^{(0)} S \quad (12)$$

Note that this transformation does not affect the populations.

Because the unitary transformation (11) is time-dependent, the density matrix evolution equation in the rotating frame involves the new Hamiltonian:

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(0)} = H_{\text{eff}}^{(0)}(z=0) + V_{\text{rot}} \quad (13)$$

with

$$V_{\text{rot}} = i\hbar \frac{\partial S^\dagger}{\partial t} S = kvJ_z \quad (14)$$

The Hamiltonian (13) differs from the Hamiltonian (5) by a term corresponding to the interaction with a *fictitious static magnetic field* whose Larmor frequency is equal to kv . Hence, the dynamics of a moving atom reduces to that of an atom at rest with the additional interaction with a longitudinal static magnetic field.

We thus consider the case of an atom at rest in $z = 0$ whose state is characterized by the steady-state populations (10), and we include the effect of the atomic motion described by V_{rot} . We note that the only nonzero matrix element of V_{rot} in the basis $\{|g, 0\rangle, |\psi_A(0)\rangle, |\psi_S(0)\rangle\}$ is:

$$\langle \psi_S | V_{\text{rot}} | \psi_A \rangle = \hbar kv \quad (15)$$

In the limit $kv \ll |\Delta'|$ where the motional coupling is negligible compared to the energy splitting between levels $|\psi_S\rangle$ and $|\psi_A\rangle$, one can evaluate the motion effect by perturbation theory. To first order in kv/Δ' , the only effect of V_{rot} is to change the eigenfunctions of $H_{\text{eff}}^{(0)}$ according to:

$$\begin{aligned} |\tilde{\psi}_S\rangle &= |\psi_S\rangle + \frac{6kv}{\Delta'} |\psi_A\rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\left(1 + \frac{6kv}{\Delta'}\right) |g, 1\rangle + \left(1 - \frac{6kv}{\Delta'}\right) |g, -1\rangle \right] \end{aligned} \quad (16.a)$$

$$\begin{aligned} |\tilde{\psi}_A\rangle &= |\psi_A\rangle - \frac{6kv}{\Delta'} |\psi_S\rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\left(1 - \frac{6kv}{\Delta'}\right) |g, 1\rangle - \left(1 + \frac{6kv}{\Delta'}\right) |g, -1\rangle \right] \end{aligned} \quad (16.b)$$

where one notices that whereas $|\psi_S\rangle$ and $|\psi_A\rangle$ contain the same amount of $|g, 1\rangle$ and $|g, -1\rangle$, it is no longer the case for $|\tilde{\psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle$. To first order in kv/Δ' , the motion-induced modification of the atomic density matrix thus reduces to the *creation of a magnetization* in the ground state of the order of $\hbar kv/\Delta'$. More precisely, one has:

$$\langle J_z(v) \rangle^{(0)} = -\frac{60}{17} \hbar \frac{kv}{|\Delta'|} \quad (17)$$

Note that the energy levels and the populations of the Hamiltonian eigenstates are not modified by atomic motion to first order in kv/Δ' , as shown in [7].

4. Force and momentum diffusion coefficient

a. Mean cooling force

For physical interpretations, it is convenient to distinguish between two contributions to the cooling force. On one hand, the reactive force, which accounts for stimulated photon redistribution processes between the two counterpropagating cooling waves, and consequently to a $\pm 2\hbar k$ momentum transfer to the atoms. On the other hand, the dissipative force, which stands for the radiation pressure exerted on the atoms by the cooling beams. As shown in [7], the dissipative force is predominant over the reactive force by a factor of 5. This is due to the fact that

redistribution processes are limited to a finite number of steps in the σ^+ - σ^- configuration because of the perfect correlation between the angular momentum and the momentum carried by the photons of the cooling waves. Hence, the number of successive cycles: absorption of a σ^+ photon-stimulated emission of a σ^- photon is finite. One can thus consider that the cooling force in the absence of probe is mainly due to the *unbalanced radiation pressures* exerted by the two cooling waves because of the existence of a *motion-induced nonzero magnetization* in the ground-state. More precisely, it is possible to show that:

$$F^{(0)} = k \frac{\Gamma'}{2} \langle J_z \rangle^{(0)} \quad (18)$$

It is convenient to substitute the dimensionless parameter $u = kv/|\Delta'|$ for the atomic velocity, and to scale the atomic detuning in units of Γ , and F in units of $\hbar k \Gamma'$. One thus has:

$$F^{(0)}(v) = \hbar k \Gamma' \mathcal{F}^{(0)} \left(u = \frac{kv}{|\Delta'|}, \frac{\Delta}{\Gamma} \right) \quad (19)$$

$\mathcal{F}^{(0)}$ is plotted in Fig. 2.a as a function of u for a detuning $\Delta = -5 \Gamma$. One can distinguish between two limiting cases. First, in the regime $u \ll 1$ where the effective Hamiltonian (13) is dominated by the effect of the light-shifts, the motion-induced magnetization is proportional to the atomic velocity (see §II.A.3) and hence the cooling force appears as a pure friction force $F^{(0)} = -\alpha v$ with friction coefficient:

$$\alpha = \frac{120}{17} \hbar k^2 \frac{|\Delta| \Gamma}{4\Delta^2 + 5\Gamma^2} \quad (20)$$

Note that α is *independent of the laser intensity* and *inversely proportional to the detuning* in the limit $|\Delta| \gg \Gamma$. Second, in the regime $u \gg 1$, the effective Hamiltonian (13) is dominated by the effect of the inertial magnetic field, which leads to equal populations in the $|g, 1\rangle$ and $|g, -1\rangle$ sublevels. As a result, the radiation pressures of the cooling beams cancel each other and the sub-Doppler cooling force vanishes (note however that the usual Doppler cooling would lead to a residual cooling force).

b. Momentum diffusion coefficient

The derivation of the momentum diffusion coefficient is somewhat more difficult than the calculation of the cooling force. One possibility is to work in the Heisenberg representation and to derive the momentum diffusion coefficient from the temporal autocorrelation function of the cooling force [12]. We use in appendix I a different approach in the Schrödinger representation

which provides a convenient and systematic way for deriving both the cooling force and the momentum diffusion coefficient. Similarly to the case of the cooling force we scale D in units of $\hbar^2 k^2 \Gamma$, and we consider the dimensionless quantity $\mathcal{D}^{(0)}$ defined by:

$$D^{(0)}(v) = (\hbar k)^2 \Gamma \mathcal{D}^{(0)}\left(u = \frac{kv}{|\Delta|}, \frac{\Delta}{\Gamma}\right) \quad (21)$$

$\mathcal{D}^{(0)}$ is plotted in Fig. 2.b as a function of u for a detuning $\Delta = -5 \Gamma$. One notes that the diffusion coefficient exhibits a noticeable dependence on the atomic velocity, and in particular that there is a difference between the case of an atom at rest and the case of a very fast atom [13]. It is possible to show that:

$$\mathcal{D}^{(0)}\left(0, \frac{\Delta}{\Gamma}\right) = \frac{36}{17(1 + 4\Delta^2/5\Gamma^2)} + \frac{29}{85} \quad (22)$$

$$\lim_{u \rightarrow \infty} \mathcal{D}^{(0)}\left(u, \frac{\Delta}{\Gamma}\right) = \frac{1171}{440} \quad (23)$$

B. Damping rates of populations and coherences

As already emphasized in our previous paper [2], the widths of the different resonances appearing on both probe transmission and phase conjugation spectra are related to damping rates of some dynamic evolution modes of the system consisting of an atom interacting with the pump fields. In order to interpret such spectra, two steps are needed. First, one has to characterize the different evolution times involved in the relaxation toward steady-state of an off-equilibrium state. This is achievable by analyzing the time evolution equation for the atomic state in the presence of the pump beams only. Second, considering a particular geometry for the pump-probe interaction, one has to estimate which evolution modes are excited by the probe beam. Once these modes are identified, it is straightforward to determine the widths and locations of the resonances displayed on the spectra. In this section, the first step is considered.

In the case of 1D σ^+ - σ^- optical molasses, the typical evolution time of the internal variables is much shorter than that of the external degrees of freedom [14]. As a result, the temporal evolution of the atomic state can be decoupled into two separate problems. First, one treats the evolution of the external degrees of freedom after adiabatic elimination of the internal variables. For example, it is possible to write a Fokker-Planck equation for the temporal evolution of the atomic momentum distribution [15]. Second, one considers the temporal evolution of the internal degrees of freedom for an atom having a well-defined external state. As a consequence, we will

distinguish between the damping rates involving the internal variables and those involving the external degrees of freedom.

1. Damping rates for internal variables

We estimate here the typical damping rates for observables involving only the atomic internal variables for a given external state. These observables play a role when the frequency difference between the probe and the cooling beams is large compared to the typical evolution rate of the external degrees of freedom, so that the external state of the atom is not affected by the presence of the probe beam. This is in particular the case for the side-band Raman resonances involving $|\tilde{\psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle$, which occur for a frequency difference between probe and pump of the order of Δ' [6], [5] (see also §III.A). The damping rates for the internal variables γ_{int} are expected to be of the order of the typical optical pumping rate [16]:

$$\gamma_{\text{int}} \approx \Gamma' \quad (24)$$

In order to find the actual widths of the resonances, it may be necessary to take also into account the inhomogeneous width associated with the various possible external states, which corresponds to a Doppler broadening of the resonance (usually smaller than Γ').

2. Damping rates for external variables

We now concentrate on the damping rates for observables involving the external degrees of freedom. These observables play a key role in the central structure of the spectra [5] for which the frequency difference between the probe and the cooling beams is sufficiently small for the external degrees of freedom to be affected by the probe excitation. As in the case of a 1D lin \perp lin molasses [2], it is necessary to distinguish between two limiting cases depending on the sub-Doppler cooling efficiency, or equivalently on the width of the stationary momentum distribution compared with the linearity range of the cooling force. In this paragraph, we consider the temporal evolution of density matrix elements between external states corresponding to a given momentum *in the rotating frame* [17].

a. The stationary momentum distribution lies within the linearity range of the cooling force

In that situation, it is possible to approximate the cooling force by a pure friction force whose friction coefficient α is given by (20). Let us first consider the case of a modification of the momentum distribution. Because of the dynamical relation:

$$\partial_t \tilde{p} = F^{(0)} = -(\alpha/M)\tilde{p} \quad (25)$$

we expect the relaxation rate of an observable involving a modification of the momentum distribution to be of the order of α/M .

We now consider the case of an observable involving coherences between states having different momenta. Linear combinations of such coherences are involved in modes associated with spatial modulations of the atomic density, as shown by the relation:

$$\langle z|\tilde{\sigma}|z\rangle = \frac{1}{2\pi\hbar} \int d\tilde{p} d\tilde{p}' e^{i(\tilde{p}-\tilde{p}')z/\hbar} \langle \tilde{p}|\tilde{\sigma}|\tilde{p}'\rangle \quad (26)$$

We thus have to estimate the damping rate of such modulations. Because the populations of the external states having a well-defined momentum have a finite lifetime of the order of M/α , one expects the damping rate of the spatial modulation to be of the order of α/M , but spatial diffusion can also take place and increase the damping rates. Let us estimate the influence of this phenomenon.

The elementary step in spatial diffusion is equal to $\bar{v}(M/\alpha)$ where \bar{v} is the r.m.s. atomic velocity. This corresponds to the distance an atom travels before its velocity noticeably changes (α/M is the damping rate of the atomic velocity). The time lag between two consecutive elementary steps of the random walk is equal to M/α , so that the spatial diffusion coefficient is equal to $D_z^{(0)} = \frac{\bar{v}^2}{2\alpha/M}$. An estimate of the damping rate due to spatial diffusion is thus:

$$\gamma_{D_z} = \frac{\kappa^2 \bar{v}^2}{\alpha/M} \quad (27)$$

where κ is the wavevector which characterizes the spatial modulation of the atomic density [18].

Finally, one has to estimate when spatial diffusion is the relevant damping mechanism. The condition for this process to occur is that its elementary step is much smaller than the spatial period of the density modulation. One can express this condition as $\kappa\bar{v} \ll \alpha/M$, which means that the

Doppler width is much smaller than the velocity damping rate. We thus have to distinguish between two limiting cases:

(i) If $\kappa\bar{v} \ll \alpha/M$, spatial diffusion is a relevant damping mechanism. It clearly appears that $\gamma_{D_s} \ll \alpha/M$. The shortest relaxation time is thus associated with the damping of the atomic velocity. Furthermore, condition $\kappa\bar{v} \ll \alpha/M$ implies that the inhomogeneous Doppler width is smaller than α/M . In those circumstances, one expects to find Rayleigh resonances having a width of the order of α/M . The value of the friction coefficient of the cooling force can be deduced from the width of the central resonance, as shown experimentally in [5].

(ii) If $\kappa\bar{v} \gg \alpha/M$, spatial diffusion does not occur. In this situation, the spatial modulation of the atomic density only decays because of velocity spreading. In that case, one expects to observe Doppler broadened resonances because the Doppler width $\kappa\bar{v}$ is larger than the width associated with the damping of the atomic velocity. This result shows that it could be possible to deduce the molasses temperature from the width of the central resonance for an appropriate experimental geometry. Such a possibility was already suggested by Guo *et al.* [9].

b. The stationary momentum distribution is larger than the linearity range of the cooling force

In the limiting case where the σ^+ - σ^- sub-Doppler cooling mechanism becomes inefficient, a non-negligible fraction of the atoms have a velocity out of the linearity range of the cooling force. For such atoms, the sub-Doppler cooling force is inefficient and we find a situation similar to the limit of shallow optical potentials in 1D lin \perp lin optical molasses [2]. In that regime, very long damping times for momentum distribution modifications may occur, due to the very slow relaxation in momentum space. It is then necessary to have an accurate estimate of the excitation induced by the probe beam in order to evaluate the width of the resonances. Note that the Doppler cooling friction force (characterized by a friction coefficient α_D) constraints the decay rates of the populations to be larger than α_D/M , and thus puts a lower limit on the damping rates.

III. Atoms in the presence of the probe beam

A. General

In addition to the cooling beams, a weak probe beam of amplitude E_p and frequency $\omega_p = \omega + \delta$ ($|\delta| \ll \omega$) propagating along the $+z$ direction is sent through the atomic medium (Fig. 3). The circular polarization of the probe can be either parallel (σ^+) or orthogonal (σ^-) to the one of the pump beam which propagates in the same direction. In the following, we will refer to these two cases as the \parallel and the \perp polarization configurations. Because we consider a pump-probe experiment, all the quantities which appear in this section will be written to first order in the small parameter:

$$\varepsilon = \frac{E_p}{E_0} \ll 1 \quad (28)$$

We thus study the linear response of the system to the probe-induced perturbation. In the experimental situation of Fig. 3, one may have access to several physical signals. We consider two of them in the following. The first one is the variation of the probe transmission versus ω_p . The second one corresponds to four-wave mixing optical phase conjugation. This process is associated with absorption of photons from the counterpropagating cooling beams, amplification of the probe and generation of a wave of frequency $2\omega - \omega_p$ propagating in the direction opposite to the direction of the probe. Such a wave can be detected by introducing a plate on the path followed by the probe (Fig. 3). Recently, such a signal has been experimentally observed in 1D corkscrew optical molasses [19].

As stated before, the characteristics of the resonances in pump-probe experiments are only determined by the interaction of the pump beams with the atoms. However, the evolution modes that can be excited depend on the probe geometry. It follows that by varying the probe polarization or direction of propagation, one may be sensitive to different evolution time constants and obtain resonances having different shapes and widths. Let us illustrate this point on the \parallel and \perp polarization configurations [20].

In the \parallel polarization configuration, the atom-probe field interaction terms are space-independent in the rotating frame (Fig. 4.b). As a result, the probe beam will only induce stimulated processes involving external states having the *same* well-defined momentum \vec{p} in the rotating frame. In Fig. 5, we have represented the energy levels for an atom of momentum \vec{p} , together with the different possible probe-induced stimulated processes between these levels. First, when $\hbar\delta$ is of the order of the energy splitting between levels $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\vec{p}\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\vec{p}\rangle$

($\hbar\delta \approx \pm\hbar|\Delta'|/6$), stimulated Raman processes between these *differently* light-shifted and populated levels can occur, leading to amplification ($\delta < 0$, Fig. 5.a) or absorption ($\delta > 0$, Fig. 5.b) of the probe beam. These processes involve a probe-induced Zeeman coherence between internal states $|\tilde{\psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle$. As discussed in §II.B.1, the width of the associated resonances is expected to be of the order of Γ' , *without any Doppler broadening* (in the limit where the stationary momentum distribution lies within the linearity range of the cooling force, one can consider the energy splitting between $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ to be independent of \tilde{p} , see §II.A.3). Second, stimulated Rayleigh transitions are also expected for $\delta \approx 0$ (Fig. 5.c). These transitions occur between *equally* populated and light-shifted sublevels (contrary to Raman processes), and involve a modification of the momentum distribution. The width of the associated central resonance is thus expected to be of the order of α/M (see §II.B.2.a).

In contrast, in the \perp polarization configuration, the atom-probe field interaction terms exhibit a spatial dependence proportional to e^{2ikz} in the rotating frame (Fig 4.c). It follows that in this geometry, the probe beam will be responsible for stimulated transitions between external states having momenta *differing* by $2\hbar k$. In Fig. 6 are represented the different possible probe-induced stimulated processes between such levels. First (Fig. 6.a), the probe beam undergoes stimulated Raman amplification when $\hbar\delta (< 0)$ is of the order of the energy splitting between levels $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p} + 2\hbar k\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ ($\hbar\delta \approx -\hbar|\Delta'|/6 + 2\hbar k \frac{\tilde{p}}{M}$). Similarly (Fig. 6.b), it experiences absorption when $\hbar\delta (> 0)$ is of the order of the energy difference between levels $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\tilde{p} + 2\hbar k\rangle$ ($\hbar\delta \approx \hbar|\Delta'|/6 + 2\hbar k \frac{\tilde{p}}{M}$). As in the previous polarization configuration, these processes involve Zeeman coherences between *internal* states, and the width of the associated resonances is expected to be of the order of Γ' . Moreover, because the resonance condition for the Raman processes now depends on the atomic momentum \tilde{p} , it is clear that the *Raman resonances will be Doppler-broadened* by approximately $4k\bar{v}$. Second, contrary to the previous polarization configuration, the stimulated transitions occurring for $\delta \approx 0$ (Fig. 6.c) now involve sublevels of the kind $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ and $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p} + 2\hbar k\rangle$ having *different* energies and populations (because of the properties of the stationary momentum distribution) and are thus stimulated *Raman* transitions, but occurring between states belonging to a continuum. They involve *coherences between external states*, and because $k\bar{v} \gg \alpha/M$ in the case of a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ transition, the width of the associated central resonance (also called recoil-induced resonance [9]) is expected to be of the order of $4k\bar{v}$ (see §II.B.2.b and appendix III).

B. Physical analysis of the probe transmission spectra

Before turning to a quantitative calculation of the spectra, we first give a physical interpretation of the different resonances.

1. \parallel polarization configuration

In the \parallel polarization configuration, the dominant contribution to the modification of the atomic internal state is associated with the reactive effects induced by the probe and the copropagating cooling beam (see §III.C.3.b). The sum of these fields is a σ^+ -polarized field whose intensity exhibits a time-modulated component at frequency δ . Because a nonresonant σ^+ -polarized field creates light-shifts that lift the degeneracy of the ground-state Zeeman sublevels in a way similar to a longitudinal magnetic field [21], *the modification of the light-shifts by this modulated component is equivalent to a fictitious longitudinal magnetic field* oscillating at frequency δ , and whose Larmor frequency $\varepsilon \Omega_B$ is proportional to the probe field amplitude [22]. It follows that in the presence of the probe beam, the Hamiltonian (13) associated with the reactive part of the atom-field coupling in the rotating frame transforms into:

$$\tilde{H}_{\parallel} = \tilde{H}_{\text{eff}}^{(0)} - \varepsilon \Omega_B \cos(\delta t) J_z \quad (29)$$

First, because J_z has nonzero matrix elements between eigenstates $|\tilde{\psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle$ of \tilde{H}_{eff} , magnetic resonance takes place between these levels as $\hbar|\delta|$ is of the order of their energy splitting. As a result, Zeeman coherences between $|\tilde{\psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle$ will exhibit a resonant enhancement around $\delta \approx \pm|\Delta'|/6$, leading to resonances having a width of the order of Γ' (as shown in §II.A.1, the departure rates by optical pumping from $|\tilde{\psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle$ are of the order of Γ'). These resonances are nothing but the Raman resonances reported in [6].

Second, one notes that expression (29) is equivalent to (13) where kv is replaced by $kv - \varepsilon \Omega_B \cos(\delta t)$. It follows that the magnetization of an atom of velocity v can be readily deduced from (17), and reads:

$$\langle J_z(v) \rangle \propto \hbar \frac{kv - \varepsilon \Omega_B \cos(\delta t)}{\Delta'} \quad (30)$$

From the expression of $\langle J_z(v) \rangle$, one can derive the average force due to the radiation pressure experienced by an atom of velocity v (§II.A.4):

$$F = -\alpha v + \varepsilon(f_P + f_B) \cos(\delta t) \quad (31)$$

where f_P and f_B account for the modification of the radiation pressure due to the probe beam. Because our approach is linear in the probe amplitude, this modification arises from only two processes. First, f_P originates from the interference of the probe and the copropagating pump beams which causes the intensity and hence the radiation pressure on an atom (whose internal state is determined by the cooling beams) to oscillate at frequency δ . Second, expression (18) shows that the probe-induced modification of the atomic magnetization (30) will result into a modification of the radiation pressure of the pump beams. The component f_B is associated with such an effect. In steady-state, the average velocity $\langle v \rangle$ of the molasses is obtained by solving the equation of dynamics $M d\langle v \rangle / dt = F$. This yields:

$$\langle v \rangle = \varepsilon \frac{f_P + f_B}{M} \frac{1}{\delta^2 + (\alpha/M)^2} [\delta \sin(\delta t) + (\alpha/M) \cos(\delta t)] \quad (32)$$

Experiments performed with a real static longitudinal magnetic field B_0 [23] have demonstrated a locking of the mean atomic velocity around a value proportional to B_0 . In the present situation, the mean velocity oscillates at frequency δ and is phase-shifted with respect to the applied fictitious magnetic field because of the damping of the atomic velocity by the cooling friction force. The average longitudinal angular momentum of the molasses is expected to be of the order of $\langle J_z(\langle v \rangle) \rangle$ which is deduced from Eqs (30) and (32):

$$\langle J_z(\langle v \rangle) \rangle \propto \varepsilon \frac{\hbar k}{M \Delta'} \left[\frac{(f_P + f_B) \delta}{(\alpha/M)^2 + \delta^2} \sin(\delta t) + \frac{(\alpha/M) f_P - (M/\alpha) \delta^2 f_B}{(\alpha/M)^2 + \delta^2} \cos(\delta t) \right] \quad (33)$$

The polarization P of the atomic sample induced by a circularly-polarized light depends on $\langle J_z \rangle$ because the Clebsch-Gordan coefficients are not the same for transitions starting from different Zeeman sublevels of the ground-state ($P \propto (\chi_0 + \chi_1 \langle J_z \rangle) E_0$). The energy transfer between the probe and the medium is $\propto \overline{E_p dP/dt} = \chi_1 \overline{E_p E_0} d\langle J_z \rangle / dt$, and thus only arises from the component of $\langle J_z(\langle v \rangle) \rangle$ which is $\pi/2$ phase-shifted with respect to the modulated part $E_p E_0$ of the incident field intensity [24]. The Rayleigh resonance is thus a dispersive curve [25], [26] with peak-to-peak distance equal to $2\alpha/M$.

2. \perp polarization configuration

Let us consider an atom of velocity v in the rotating frame, interacting with the probe and the cooling beams. It is possible to show that the main contribution to the modification of the atomic internal state arises from the reactive effects induced by the probe and the counterpropagating cooling beam. These beams are equivalent to a σ^- -polarized field whose intensity exhibits a time-

modulated component at frequency $\delta - 2k\bar{v}$. These reactive effects are described by the Hamiltonian:

$$\tilde{H}_\perp = \tilde{H}_{\text{eff}}^{(0)} + \varepsilon \Omega_B \cos[(\delta - 2k\bar{v})t] J_z \quad (34)$$

As in the previous polarization configuration, the oscillating part of Hamiltonian (34) leads to magnetic resonance between levels $|\tilde{\psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle$ when $\hbar|\delta - 2k\bar{v}|$ is of the order of their energy splitting. Because the magnetic resonance condition ($\delta \approx \pm|\Delta'|/6 + 2k\bar{v}$) now depends on v , *Raman resonances are inhomogeneously Doppler-broadened*. A comparison between the widths of the side-band Raman resonances in both the \parallel and the \perp polarization configurations may thus provide information about the temperature of the molasses.

As discussed in §III.A, the central resonance in the \perp polarization configuration arises from Raman transitions between levels associated with different external states $|\bar{p} - \hbar k\rangle$ and $|\bar{p} + \hbar k\rangle$. These levels are *differently populated* (because of the distribution of atomic momentum) and their *energy splitting* is equal to $2\hbar k \bar{p}/M$ (the difference in kinetic energy between the different external states). Note that these features (population difference and nonzero energy splitting) which are necessary for Raman transitions to occur, result from very different physical processes compared to the side-band Raman resonances. Indeed, whereas side-band Raman resonances involve the atomic *internal* degrees of freedom (optical pumping and light-shifts), the central Raman resonance only implies the *external* degrees of freedom. More precisely, it involves coherences between levels corresponding to the *same* internal state (one neglects the momentum dependence of internal states $|\tilde{\psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\psi}_A\rangle$ on the scale of $2\hbar k$) and to *different* external states $|\bar{p} - \hbar k\rangle$ and $|\bar{p} + \hbar k\rangle$. As discussed in §II.B.2.a, these coherences are associated with a spatial modulation of the atomic density on the scale of $\lambda/2$, due to the combined effect of the probe and the cooling fields. The subsequent backscattering of the counterpropagating cooling wave on this time-modulated spatial modulation, which is not in phase with the fields excitation because of the atomic finite response time ($\approx M/\alpha$), leads to an energy transfer between the cooling and the probe beams. For an atom of velocity v , this transfer exhibits a resonant enhancement when the frequency difference between the probe and the counterpropagating beams is of the order of α/M . This Rayleigh resonance is a dispersive curve centered in $\delta = 2k\bar{v}$ (*because of the Doppler effect*) with peak-to-peak distance of the order of $2\alpha/M$. When averaging over the stationary momentum distribution of width $2k\bar{v} \gg 2\alpha/M$, the contribution of each “velocity group” appears as being proportional to the derivative of a Dirac function centered in $\delta = 2k\bar{v}$, and the average energy transfer is found to be proportional to $\partial_{\bar{p}} \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(M\delta/2k) \propto \delta/2k\bar{v} e^{-\delta^2/2(2k\bar{v})^2}$ in the case of a gaussian momentum distribution (see appendix III). The central resonance is thus expected to have the shape of the derivative of a gaussian function with peak-to-peak distance equal to $4k\bar{v}$. Such a lineshape was

previously predicted (recoil-induced resonances [9]), and its width results from an inhomogeneous Doppler broadening.

C. Quantitative investigation of the \parallel polarization configuration

1. Principle of the calculation

a. General

In experiments dealing with cold atoms, the cooling beams play many different roles. First, the interaction of the atoms with these beams results into a strong velocity-dependent modification of the atomic internal state (light-shifts and optical pumping). Second, the subsequent interaction of the cooling waves with these atoms (radiation pressure and photon redistribution) leads to an efficient cooling force which modifies the atomic external state. It is thus the *strong correlation between the internal and external atomic degrees of freedom* which leads to very low temperatures. As a result, an optical molasses is different from an atomic sample whose temperature results from its interaction with an external reservoir. A simple illustration of this point can be deduced from our previous considerations. The steady-state density matrix for a 1D σ^+ - σ^- molasses in the secular limit where (4) is fulfilled is expected to be diagonal in the basis $\{ |\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle, |\tilde{\psi}_A\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle, |g,0\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle \}$. The state of the optical molasses is thus described by populations of levels such as $|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle$ which read in the laboratory frame:

$$|\tilde{\psi}_S\rangle \otimes |\tilde{p}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\left(1 + \frac{6k\tilde{p}}{M\Delta'} \right) |g,1\rangle \otimes |p + \hbar k\rangle + \left(1 - \frac{6k\tilde{p}}{M\Delta'} \right) |g,-1\rangle \otimes |p - \hbar k\rangle \right] \quad (35)$$

It clearly appears in this expression that contrary to the case of an atomic medium interacting with a reservoir at temperature T , the steady-state density matrix of laser-cooled atoms is *not* diagonal in momentum space in the case of 1D σ^+ - σ^- molasses. This shows that an accurate treatment of corkscrew molasses implies to consider *both* the internal and the external states of the atoms to arise from the interaction with the cooling fields.

As mentioned in §II.B, in the case of 1D σ^+ - σ^- molasses for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ atomic transition, such a treatment is significantly simplified by two factors. First, the typical evolution time constant of the internal degrees of freedom is much shorter than that of the external variables, allowing to perform an adiabatic elimination of the atomic internal state. Second, by use of the unitary transformation (11) the density matrix for the external degrees of freedom becomes purely diagonal, so that the atomic medium is completely described by a Fokker-Planck evolution

equation for the atomic momentum distribution $\tilde{\pi}(\tilde{p})$ (in the \parallel polarization configuration, the probe beam only induces stimulated transitions between levels having the same external state in the rotating frame, and therefore does not create any coherence between different external states).

Hence, the atomic density matrix is derived in two steps. First, one deduces the stationary momentum distribution $\tilde{\pi}_{st}(\tilde{p})$ from the Fokker-Planck equation [15]:

$$\partial_t \tilde{\pi} = -\partial_{\tilde{p}}(F \tilde{\pi}) + \partial_{\tilde{p}}(D \partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi}) \quad (36)$$

where F and D stand for the mean cooling force and the momentum diffusion coefficient due to both the cooling and the probe beams. Second, one evaluates the stationary internal state $\tilde{W}_{0,st}(\tilde{p})$ for an atom having a well-defined momentum \tilde{p} (see appendix I, Eq. (A.I.7)). The total stationary density matrix of the atomic system then reads:

$$\tilde{\sigma}_{st} = \tilde{\pi}_{st}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}(\tilde{p}) \quad (37)$$

To first order in ϵ , $\tilde{\pi}_{st}$ can be written:

$$\tilde{\pi}_{st} = \tilde{\pi}_{st}^{(0)} + \epsilon \left[\tilde{\pi}_{st}^{(1)} e^{-i\delta t} + \left(\tilde{\pi}_{st}^{(1)} \right)^* e^{i\delta t} \right] \quad (38)$$

where $()^*$ denotes the complex conjugate of $()$. Using (A.I.13), one thus has:

$$\tilde{\sigma}_{st} = \tilde{\sigma}_{st}^{(0)} + \epsilon \left[\tilde{\sigma}_{st}^{(1)} e^{-i\delta t} + \left(\tilde{\sigma}_{st}^{(1)} \right)^\dagger e^{i\delta t} \right] \quad (39)$$

with:

$$\tilde{\sigma}_{st}^{(0)} = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(\tilde{p}) \quad (40)$$

$$\tilde{\sigma}_{st}^{(1)} = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(\tilde{p}) + \tilde{\pi}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(\tilde{p}) \quad (41)$$

The derivation of $\tilde{W}_{0,st}(\tilde{p})$ is detailed in appendix I and presents no difficulty. In contrast, the calculation of the stationary momentum distribution is somewhat more subtle and depends on the relative value of δ compared to Γ .

(i) Side-band Raman resonances

The typical relaxation rate for external variables being of the order of α/M , one can consider that in the case of side-band Raman resonances where $|\delta| \approx |\Delta'| \gg \alpha/M$, the probe beam does not affect the atomic degrees of freedom. Therefore $\tilde{\pi}_{st}$ reduces to the steady-state momentum distribution $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ due to the interaction with the cooling beams alone, and the probe-induced

modification of the total density matrix is given by $\tilde{\sigma}_{\text{st}}^{(1)} = \tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,\text{st}}^{(1)}(\tilde{p})$. The probe-induced Zeeman coherences between differently populated and light-shifted ground-state sublevels are contained in $\tilde{W}_{0,\text{st}}^{(1)}(\tilde{p})$. Side-band Raman resonances thus appear as an average over the steady-state momentum distribution $\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)}$ of transition processes for atoms having different momenta.

$\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)}$ is obtained by solving:

$$\mathcal{L} \cdot \tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)} = 0 \quad (42)$$

with

$$\mathcal{L} \cdot \tilde{\pi} = -\partial_{\tilde{p}} \left(F^{(0)} \tilde{\pi} \right) + \partial_{\tilde{p}} \left(D^{(0)} \partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi} \right) \quad (43)$$

One finds:

$$\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)}(\tilde{p}) = \tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)}(0) \exp \left[\int_0^{\tilde{p}} d\tilde{p} \frac{F^{(0)}(\tilde{p})}{D^{(0)}(\tilde{p})} \right] \quad (44)$$

Note that $\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)}$ completely characterizes the external state of the atoms and gives access in particular to the molasses temperature.

(ii) Central resonance

The analysis of the central resonance (for which $|\delta| \approx \alpha/M$) can be performed in a similar way, but the probe-induced temporal modulation of F and D (given in appendix I.B) leads to an additional modification of the momentum distribution. The probe-induced modification of the total density matrix is thus given by (41), and the central resonance arises from two contributions. The first term of (41) corresponds to the wings of the side-band Raman resonances. The second term of (41) appears as a probe-induced modification of the momentum distribution. This process is the analogous of the probe-induced shift of the average velocity $\langle v \rangle$ considered in §III.B.1.

$\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(1)}$ is derived from (36) using perturbation theory to first order in ε . One obtains an equation of the form:

$$(i\delta + \mathcal{L}) \cdot \tilde{\pi}_{\text{st}}^{(1)} = \tilde{S} \quad (45)$$

with:

$$\tilde{S} = \partial_{\tilde{p}} \left(F^{(1)} \tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)} \right) - \partial_{\tilde{p}} \left(D^{(1)} \partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)} \right) \quad (46)$$

We solve this equation as follows. First, the Liouville operator \mathcal{L} is diagonalized:

$$\mathcal{L} \cdot \tilde{\pi}_\lambda = -\gamma_\lambda \tilde{\pi}_\lambda \quad (47)$$

where $\tilde{\pi}_\lambda$ is an eigenvector of eigenvalue $-\gamma_\lambda \leq 0$. Second, the source term \tilde{S} due to the interaction with the probe is expanded on the basis of eigenvectors $\tilde{\pi}_\lambda$:

$$\tilde{S} = \sum_{\lambda} s_{\lambda} \tilde{\pi}_{\lambda} \quad (48)$$

- Finally, the first order correction to the momentum distribution is given by:

$$\tilde{\pi}_{st}^{(1)} = \sum_{\lambda} \frac{s_{\lambda}}{-\gamma_{\lambda} + i\delta} \tilde{\pi}_{\lambda} \quad (49)$$

b. Case of probe transmission spectra

In order to calculate the probe transmission spectrum, we evaluate the polarization \bar{P} of the medium from the total density matrix and we calculate the power transfer \mathcal{P} from the atoms to the probe field, normalized to ϵ^2 and neglecting linear absorption:

$$\mathcal{P} = -\frac{1}{\epsilon^2} \overline{\bar{E}_p \cdot \frac{d\bar{P}}{dt}} = \frac{N\hbar\Omega^2\omega L}{2(\Delta^2 + \Gamma^2/4)} \text{Im} \left\{ (\Delta - i\Gamma/2) \text{Tr} \left[S^\dagger \wp S \tilde{\sigma}_{st}^{(1)} \right] \right\} \quad (50)$$

where N is the atomic density and L is the length of the atomic medium. The trace Tr is taken over both the internal and the external degrees of freedom of the atom. \wp is an operator equal to:

$$\wp = \sqrt{2} (\bar{d}^- \cdot \bar{e}_p^*) (\bar{d}^+ \cdot \bar{e}_0(Z)) e^{-ikZ} \quad (51)$$

where Z is the position *operator*. \bar{e}_p (resp. \bar{e}_0) is the polarization of the probe (resp. pump) field, \bar{d}^+ is the dimensionless exciting part of the dipole operator ($\bar{d}^+ = P_e \bar{d} P_g$ where P_e and P_g are the projectors onto the excited and ground state respectively) and $\bar{d}^- = (\bar{d}^+)^\dagger$.

c. Case of phase conjugation spectra

The phase conjugation reflection coefficient \mathcal{R} is calculated in the limit of a thin atomic medium, and is given by:

$$\mathcal{R} = \left| \frac{Nd^2\omega L}{2\sqrt{2}\epsilon_0\hbar c(\Delta + i\Gamma/2)} \text{Tr} \left[S^\dagger \wp S (\tilde{\sigma}_{st}^{(1)})^\dagger \right] \right|^2 \quad (52)$$

with $\mathfrak{S} = \sqrt{2}(\bar{\mathbf{d}}^- \cdot \bar{\mathbf{e}}_{\text{pc}}^*)(\bar{\mathbf{d}}^+ \cdot \bar{\mathbf{e}}_0(\mathbf{Z}))e^{ikZ}$ (where $\bar{\mathbf{e}}_{\text{pc}}$ is the polarization of the phase-conjugate beam, orthogonal to the polarization of the probe beam). The comparison between (50) and (52) shows that the calculation of \mathcal{R} is very similar to that of \mathcal{P} since the phase-conjugate reflectivity and the probe transmission are expressed in terms of the same quantities.

2. Side-band Raman resonances

We first investigate the characteristics of the side-band Raman resonances reported in the experiment of [5]. As previously mentioned, these resonances are due to an average over the atomic velocity distribution of contributions of atoms whose internal state is modified by the presence of the probe beam. These modifications, which are described by the internal matrix $\tilde{\mathbf{W}}_{0,\text{st}}^{(1)}$, are calculated to first order in ϵ for atoms having well-defined momenta. As shown in appendix I (Eqs (A.I.17) and (A.I.22.a)), $\tilde{\mathbf{W}}_{0,\text{st}}^{(1)}$ is solution of:

$$\tilde{\mathbf{M}}_0^{(0)} \cdot \tilde{\mathbf{W}}_{0,\text{st}}^{(1)} = -\frac{1}{i\hbar} [\tilde{\mathbf{H}}_{\text{eff}}^{(1)}, \tilde{\mathbf{W}}_{0,\text{st}}^{(0)}] + \frac{\Gamma'}{2} (\tilde{\mathbf{A}}^{(1)} \tilde{\mathbf{W}}_{0,\text{st}}^{(0)} + \tilde{\mathbf{W}}_{0,\text{st}}^{(0)} \tilde{\mathbf{A}}^{(1)}) - \Gamma' \sum_{m=0,\pm 1} (\tilde{\mathbf{B}}_m^{(1)})^\dagger \tilde{\mathbf{W}}_{0,\text{st}}^{(0)} \tilde{\mathbf{B}}_m^{(0)} \quad (53)$$

It is possible to give a clear interpretation of the different terms of the right-hand side of (53). The first term is associated with the probe-induced coherences between levels $|\tilde{\Psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\Psi}_A\rangle$ and involves the *population difference* between these levels. This term corresponds to the usual contribution to Raman resonances. The second and the third terms describe the effect of the probe on the radiative relaxation part of the atom-field coupling. These terms, which exist even when there are no population differences between the levels, correspond to the radiative relaxation-induced extra-resonances considered by Bloembergen and coworkers [27] for the case of four-wave mixing, and which have been recently observed [26], [28].

An example of theoretical spectrum is shown on Fig. 7 for both probe transmission (Fig. 7.a) and phase conjugation (Fig. 7.b), with $\hbar|\Delta'| = 200 E_R$ (where $E_R = \hbar^2 k^2 / 2M$ is the atomic recoil energy) and a detuning $\Delta = -5\Gamma$. As previously mentioned, Raman resonances have widths of the order of the optical pumping rate ($\Gamma' = 40 E_R / \hbar$), and their positions correspond to the energy splitting between levels $|\tilde{\Psi}_S\rangle$ and $|\tilde{\Psi}_A\rangle$. These Raman side-band resonances exhibit no Doppler broadening as long as the width of the stationary momentum distribution $\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)}$ derived from (44) remains small compared with $M|\Delta'|/k$, which is the case as long as the sub-Doppler cooling is efficient (limit of large values of $|\Delta'|$). Moreover, in that case, it is possible to expand $\tilde{\mathbf{W}}_{0,\text{st}}^{(1)}$ in powers of the small parameter $u = kv/|\Delta'|$:

$$\tilde{W}_{0,st}^{(1)}(u) \approx \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(0) + u \left[\partial_u \tilde{W}_{0,st}^{(1)} \right](0) \quad (54)$$

The traces over the external degrees of freedom of expressions (50) and (52) are thus proportional to:

$$\int du \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(u) \left\{ \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(0) + u \left[\partial_u \tilde{W}_{0,st}^{(1)} \right](0) \right\} = \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(0) \int du \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(u) \propto \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(0) \quad (55)$$

because of the parity of $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$. Eq. (55) shows that the knowledge of the internal state of an atom having velocity $v = 0$ is sufficient for predicting the shape of the side-band Raman resonances of both probe transmission and phase conjugation spectra. It follows that in the \parallel polarization configuration and in the limit of efficient sub-Doppler cooling, a model considering atoms *at rest* would lead to the exact Raman spectra [29]. Note however that this simplification does not occur in the \perp polarization configuration (§III.D.1).

3. Rayleigh resonance

As experimentally shown in [5] and [19], both probe transmission and phase conjugation spectra display a narrow resonance in the center of the spectrum where $\delta \approx 0$. This resonance is strongly connected to the two-wave mixing resonances (also called stimulated Rayleigh or two-beam coupling resonances) that have been observed in atomic vapors [30], [26], [28]. These resonances are generally associated with the excitation of a slow internal atomic observable by the combined effect of a pump beam and a probe beam. The subsequent interaction of the pump beam with the atomic observable which is not in phase with the excitation (because of the atomic response time) leads to an energy transfer between probe and pump which exhibits a resonance when the two frequencies differ by the inverse of the atomic response time. Such resonances are thus of particular interest because their widths give access to *dynamical* characteristics of the medium. It is the aim of this paragraph to show that such resonances provide information about the dynamics of the atomic *external* degrees of freedom. In order to obtain clear analytical expressions for the spectra, we restrict ourselves to the limit where the steady-state momentum distribution $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ lies within the linearity range of the cooling force. In this limit, it is possible to approximate \mathcal{F} and \mathcal{D} by their expansion to first order in the small parameter u . In particular, $F^{(0)}$ reduces to a pure friction force (with friction coefficient given by Eq. (20)), and $D^{(0)}$ to a constant (given by Eq. (22)). $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ is deduced from (44) and reads:

$$\tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\vec{p}) = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(0) \exp(-\omega \vec{p}^2) \quad (56)$$

with
$$\varpi = \frac{\alpha}{2MD^{(0)}} = \frac{1}{2Mk_B T} \quad (57)$$

where k_B is the Boltzmann constant and T stands for the molasses temperature [31].

a. Diagonalization of the Liouville operator \mathcal{L} :

As shown in §III.C.1.a (ii), the first step of the calculation of the probe-induced modification of the atomic momentum distribution consists in diagonalizing the Liouville operator \mathcal{L} (Eq. (43)). This is readily achieved by using the change of variable $\Pi = \pi / \sqrt{\tilde{\pi}_{st}^{(0)}}$ which leads to:

$$\mathcal{L}.\pi = -2D^{(0)} \left[-\frac{1}{2} \partial_{\tilde{p}}^2 \Pi + \frac{1}{2} \varpi^2 \tilde{p}^2 \Pi - \frac{1}{2} \varpi \Pi \right] \sqrt{\tilde{\pi}_{st}^{(0)}} \quad (58)$$

where one recognizes the Hamiltonian of an harmonic oscillator of frequency ϖ . It is then straightforward to find the eigensystem of \mathcal{L} . The eigenvalues are given by:

$$\lambda_n = -n (\alpha/M) \quad (n = 0, 1, \dots) \quad (59)$$

and the associated eigenvectors read:

$$\pi_n(\tilde{p}) = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) H_n(\sqrt{\varpi} \tilde{p}) \quad (60)$$

where H_n is the n^{th} Hermite polynomial. As expected, the eigenvector associated with the eigenvalue $\lambda_0 = 0$ is the steady-state momentum distribution $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$.

b. Calculation of the source term \tilde{S} :

The second step of the calculation of $\tilde{\pi}_{st}^{(1)}$ consists in evaluating the source term of Eq. (45). As shown in expression (46), the calculation of \tilde{S} implies the derivation of the probe induced modifications of the cooling force $F^{(1)}$ and momentum diffusion coefficient $D^{(1)}$. The principle of this calculation is detailed in appendix I and presents no difficulty. We want here to concentrate on the physical interpretation of these modifications in the limit $u \ll 1$ (the behaviour of $F^{(1)}$ and $D^{(1)}$ in the limit $u \gg 1$ is discussed in appendix II).

(i) Probe-induced modification of the cooling force:

As previously emphasized in §II.A.4, it is convenient to consider the dimensionless quantity:

$$\mathcal{F}(u, \Delta/\Gamma) = \mathcal{F}^{(0)} + \varepsilon \left(\mathcal{F}^{(1)} e^{-i\delta t} + \left(\mathcal{F}^{(1)} \right)^* e^{i\delta t} \right) \quad (61)$$

rather than F . We are here interested in $\mathcal{F}^{(1)}$ which is found to be a real function. It is plotted in Fig. 8.a as a function of u for a detuning $\Delta = -5\Gamma$. We note that $\mathcal{F}^{(1)}$ is a purely positive quantity, which means that the net effect of the probe is to “push” the atoms. Despite its apparent complexity, the physical interpretation of this function is rather clear. As in §II.A.4, we distinguish between the reactive and the dissipative parts of $\mathcal{F}^{(1)}$:

$$\mathcal{F}^{(1)} = \mathcal{F}_{\text{reac}}^{(1)} + \mathcal{F}_{\text{diss}}^{(1)} \quad (62)$$

$\mathcal{F}_{\text{diss}}^{(1)}$ accounts for the modification of the radiation pressure due to the probe beam. To first order in the probe amplitude, it is possible to distinguish between two contributions to $\mathcal{F}_{\text{diss}}^{(1)}$:

$$\mathcal{F}_{\text{diss}}^{(1)} = \mathcal{F}_{\text{P}} + \mathcal{F}_{\text{B}} \quad (63)$$

First, \mathcal{F}_{P} originates from the interference of the σ^+ -polarized probe and the σ^+ -polarized copropagating pump beam which modifies the intensity and hence the radiation pressure on an atom (whose internal state is determined by the cooling beams). Second, as shown in expression (18), the probe-induced variation of the atomic magnetization will result into a modification of the radiation pressure of the pump beams. The component \mathcal{F}_{B} is associated with such an effect. As in the case of $\mathcal{F}^{(0)}$ (§II.A.4), $\mathcal{F}_{\text{reac}}^{(1)}$ is negligible compared with $\mathcal{F}_{\text{diss}}^{(1)}$ [32]. As a result, it is possible to interpret the velocity dependence of $\mathcal{F}^{(1)}$ only in terms of \mathcal{F}_{P} and \mathcal{F}_{B} .

$\hbar k \Gamma' \mathcal{F}_{\text{P}}$ is associated with the radiation pressure of a σ^+ -polarized beam propagating in the $+z$ direction, and is thus proportional to the sum of the departure rates from Zeeman sublevels $|g, m\rangle$ weighted by the steady-state populations $\pi_m^{(0)}$ of these levels in the absence of the probe beam. More precisely, one can show that \mathcal{F}_{P} reads:

$$\mathcal{F}_{\text{P}} = \frac{1}{48} \left(16 + 10 \langle J_z / \hbar \rangle^{(0)} - \langle (J_+ J_- + J_- J_+) / \hbar^2 \rangle^{(0)} \right) \quad (64)$$

where $J_{\pm} = J_x \pm i J_y$, (J_x (J_y) are the component of the angular momentum along Ox (Oy)), and $\langle \rangle^{(0)}$ denotes the average value for the atomic internal state $\tilde{W}_{0, \text{st}}^{(0)}$ due to the interaction with the cooling beams only. Expression (64) shows that \mathcal{F}_{P} is mainly the sum of a positive constant and

of a term proportional to the atomic magnetization. As shown in Eq. (18), this term is proportional to $\mathcal{F}^{(0)}$ and thus exhibits a linear dependence on the small parameter u (the last term of (64) (atomic alignment) is small and does not significantly contribute to \mathcal{F}_P). Finally, one has:

$$\mathcal{F}_P(u \ll 1) \approx \frac{1}{3} - \frac{50}{17} \frac{\Delta^2}{4\Delta^2 + 5\Gamma^2} u + o(u^2) \quad (65)$$

$\hbar k \Gamma' \mathcal{F}_B$ stands for the influence of the probe-induced modification of the atomic magnetization (described by $\tilde{W}_{0,st}^{(1)}$) on the radiation pressure exerted by the cooling beams. The variation of the atomic internal state is due to the modification of the light-shifts (described by the effective Hamiltonian $\tilde{H}_{eff}^{(1)}$) and of the optical pumping processes (described by operator $\tilde{A}^{(1)}$) by the probe beam. $\tilde{H}_{eff}^{(1)}$ and $\tilde{A}^{(1)}$ are given in appendix I (Eqs (A.I.25.b) and (A.I.26.b)) and are both proportional to an operator of the form $16I + 10J_z/\hbar - (J_+J_- + J_-J_+)/\hbar^2 + 2(J_+/\hbar^2)^2$, where I is the identity operator for the internal variables. First, we note that the third and the fourth terms of this operator have a small contribution and can be omitted for simplicity. Second, the isotropic operator I tends to lower the atomic magnetization down to zero. Because this magnetization (17) is of the order of $\hbar u$, one expects the operator I to contribute to \mathcal{F}_B only to first order in u . As a consequence, the influence of the probe beam on the atomic internal state can be described to zeroth order in u by an operator proportional to J_z (or equivalently to V_{rot}). Because $u \ll 1$, the predominant term of the effective Hamiltonian $\tilde{H}_{eff}^{(0)}$ corresponds to the light-shift part, and it is appropriate to use the basis $\{|g, 0\rangle, |\psi_A\rangle, |\psi_S\rangle\}$ for characterizing the atomic internal state. It is then straightforward to deduce from the considerations of §II.A.3 that the probe beam does not affect optical pumping processes (J_z has no diagonal element in the basis $\{|g, 0\rangle, |\psi_A\rangle, |\psi_S\rangle\}$) and that it is possible to account for the effect of the probe to zeroth order in u by performing the transformation:

$$kv \rightarrow kv - \varepsilon \frac{5}{12} |\Delta'| \cos(\delta t) \quad (66)$$

which corresponds exactly to the result found in §III.B.1. In particular, the dimensionless cooling force $\mathcal{F}^{(0)}$ transforms according to:

$$\mathcal{F}^{(0)}(u) \rightarrow \mathcal{F}^{(0)}\left(u - \varepsilon \frac{5}{12} \cos(\delta t)\right) \approx \mathcal{F}^{(0)}(u) - \varepsilon \frac{5}{12} \cos(\delta t) \partial_u \mathcal{F}^{(0)}(u) \quad (67)$$

and hence:

$$\mathcal{F}_B(u \ll 1) \approx \frac{25}{17} \frac{\Delta^2}{4\Delta^2 + 5\Gamma^2} + o(u) \quad (68)$$

which is a positive quantity accounting for the fact that in the presence of the probe beam and for $\delta t=0$, the atomic internal state is the same as for an atom of lower velocity in the absence of probe

(Eq. (66) and Fig. 2.a). Note that the derivation of \mathcal{F}_B up to first order in u leads to an additional small term which compensates for the term linear in u of (65). Finally, for $u \ll 1$, $\mathcal{F}^{(1)}$ is the sum of two positive contributions due to probe-induced modifications of the radiation pressure, and is quadratic in u .

(ii) Probe-induced modification of the momentum diffusion coefficient:

Similarly to the preceding case, we consider the dimensionless quantity:

$$\mathcal{D}(u, \Delta/\Gamma) = \mathcal{D}^{(0)} + \varepsilon \left(\mathcal{D}^{(1)} e^{-i\delta t} + \left(\mathcal{D}^{(1)} \right)^* e^{i\delta t} \right) \quad (69)$$

instead of D . The quantity of interest is $\mathcal{D}^{(1)}$ which is found to be a complex quantity whose imaginary part is Δ/Γ smaller than its real part. Because (4) is fulfilled, this imaginary component is negligible and will be omitted in the following. $\mathcal{D}^{(1)}$ is plotted in Fig. 8.b as a function of u for a detuning $\Delta = -5 \Gamma$. We note that $\mathcal{D}^{(1)}$ changes sign and is negative for a range of small positive values of u , which means that the probe beam can lower momentum diffusion. We interpret the velocity dependence of $\mathcal{D}^{(1)}$ by distinguishing two different contributions:

$$\mathcal{D}^{(1)} = \mathcal{D}_P + \mathcal{D}_B \quad (70)$$

First, \mathcal{D}_P originates from the interference of the σ^+ -polarized probe and the σ^+ -polarized copropagating pump beam which modifies the probability to absorb photons from the σ^+ component of light, and hence the momentum diffusion for an atom (whose internal state is determined by the cooling beams). Second, the probe-induced variation of the atomic internal state also results into a modification of the probability to absorb photons from the cooling beams. The component \mathcal{D}_B is associated with such an effect.

$D_P = (\hbar k)^2 \Gamma' \mathcal{D}_P$ corresponds to the excess momentum diffusion due to the probe-induced modulation of the intensity I_+ of the σ^+ component of light which leads to a modification of the probability to absorb σ^+ photons from the laser waves. First, we note that in the general situation where an atom is irradiated by two counterpropagating σ^+ - σ^- waves having intensities I_+ - I_- , the momentum diffusion coefficient D is a symmetric function of I_+ and I_- :

$$D = D(I_+, I_-) = D(I_-, I_+) \quad (71)$$

Second, in the \parallel polarization configuration, I_+ and I_- are given to first order in ε by:

$$\begin{cases} I_- = I_0 \\ I_+ = I_0[1 + 2\varepsilon \cos(\delta t)] \end{cases} \quad (72)$$

As a result, in the presence of the probe, we expect $D^{(0)} = D(I_0, I_0)$ to transform into:

$$D(I_0[1 + 2\varepsilon \cos(\delta t)], I_0) \approx D^{(0)} + 2\varepsilon I_0 \cos(\delta t) \frac{\partial D}{\partial I_0}(I_0, I_0) \approx D^{(0)} + \varepsilon I_0 \cos(\delta t) \frac{dD^{(0)}}{dI_0} \quad (73)$$

where we have used (71) and (72). It follows from Eq. (21) that \mathcal{D}_P reads:

$$\mathcal{D}_P(u) = \frac{1}{2} \left(\mathcal{D}^{(0)} - u \partial_u \mathcal{D}^{(0)} \right) \quad (74)$$

which is quadratic in u in the limit $u \ll 1$ (because so is $\mathcal{D}^{(0)}$). Using (22), one finally has:

$$\mathcal{D}_P(u \ll 1) \approx \frac{1}{2} \mathcal{D}^{(0)}(0) = \frac{18}{17(1 + 4\Delta^2/5\Gamma^2)} + \frac{29}{170} \quad (75)$$

$D_B = (\hbar k)^2 \Gamma \mathcal{D}_B$ corresponds to the additional momentum diffusion due to the probe-induced modification of the atomic internal state (described by $\tilde{W}_{0,st}^{(1)}$) which affects the probabilities to absorb σ^+ or σ^- photons from the cooling beams. We are thus in a situation very similar to the study of \mathcal{F}_B in the preceding section. The influence of the probe beam on the atomic internal state is described by an operator proportional to J_z , and because $u \ll 1$, one can account for the effect of the probe by performing the transformation (66). In particular, the dimensionless momentum diffusion coefficient $\mathcal{D}^{(0)}$ transforms according to:

$$\mathcal{D}^{(0)}(u) \rightarrow \mathcal{D}^{(0)}\left(u - \varepsilon \frac{5}{12} \cos(\delta t)\right) \approx \mathcal{D}^{(0)}(u) - \varepsilon \frac{5}{12} \cos(\delta t) \partial_u \mathcal{D}^{(0)}(u) \quad (76)$$

and hence, to zeroth order in Γ/Δ :

$$\mathcal{D}_B(u \ll 1) \approx -26u + o(u^2) \quad (77)$$

\mathcal{D}_B is thus a quantity which changes sign with u , and lowers momentum diffusion for atoms having a positive velocity. This is due to the fact that for $\delta t=0$, the internal state of an atom having positive velocity v in the presence of the probe beam is the same as for an atom of lower velocity in the absence of probe, and for which momentum diffusion is lowered (similarly, it is enhanced for an atom of negative velocity) (Eq. (66) and Fig. 2.b). Finally, to first order in u , $\mathcal{D}^{(1)}$ is a linear function of u with negative slope, resulting from the sum of two contributions due to probe-induced modifications of the absorption of σ^+ or σ^- photons from the laser waves.

c. Probe-induced modification of the atomic density matrix

The last step of the calculation of $\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(1)}$ consists in expanding the source term on the basis of the eigenvectors (60). Because we restrict ourselves to the case where the stationary momentum distribution $\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(0)}$ lies within the linearity range of the cooling force $F^{(0)}$, we approximate $\mathcal{F}^{(1)}$ and $\mathcal{D}^{(1)}$ by their expansion up to first order in the small parameter u :

$$\begin{cases} \mathcal{F}^{(1)}(u) \approx \mathcal{F}^{(1)}(0) \\ \mathcal{D}^{(1)}(u) \approx \mathcal{D}^{(1)}(0) + u(\partial_u \mathcal{D}^{(1)})(0) \end{cases} \quad (78)$$

It is then straightforward to show that \tilde{S} is of the form:

$$\tilde{S}(\tilde{p}) \approx -\hbar k \Gamma' \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0)/U_0 \right) \pi_1(\tilde{p}) + \sum_{n>1} c_n \pi_n(\tilde{p}) \quad (79)$$

where $U_0 = \hbar|\Delta'|/2E_R$, and c_n denotes complex numbers independent of \tilde{p} . Following (49), one readily obtains the expression for the probe-induced modification of the atomic density matrix:

$$\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(1)}(\tilde{p}) \approx -\hbar k \Gamma' \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0)/U_0 \right) \frac{\pi_1(\tilde{p})}{i\delta - \alpha/M} + \sum_{n>1} c_n \frac{\pi_n(\tilde{p})}{i\delta + \lambda_n} \quad (80)$$

d. Probe transmission spectrum

Once $\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(1)}$ is calculated, it is possible to derive both the probe transmission and phase conjugation spectra using expressions (50) and (52). We illustrate such a derivation by considering the case of probe transmission. As shown in (50), the power transfer \mathcal{P} from the atoms to the probe field implies the mean value of operator \wp (Eq. (51)) for the modified density matrix in the laboratory frame $\sigma_{\text{st}}^{(1)}$. In the \parallel polarization configuration of the probe, \wp can be expressed as:

$$\wp = \frac{1}{24} \left(16I + 10J_z/\hbar - (J_+J_- + J_-J_+)/\hbar^2 + 2e^{-2ikz} (J_-)^2/\hbar^2 \right) \quad (81)$$

The last term of (81) stands for the effects due to the *backscattering* of the pump wave which counterpropagates with the probe and which undergoes a polarization modification due to a probe-induced alignment in the atomic sample. The other terms represent contributions due to the copropagating pump beam interacting with the population (first term), the magnetization (second term), and the alignment (third term) induced by the probe. Because of the conservation of the total atomic population, the first term of (81) does not contribute to the power transfer. Furthermore,

the third and the last terms have a small contribution compared with the second term. It follows that the central structure of the probe transmission spectrum mainly arises from the occurrence of a *nonzero global magnetization* of the atomic medium which results from the probe-induced modification of the atomic momentum distribution $\tilde{\pi}_{st}^{(1)}$. This exactly corresponds to the interpretation given in §III.B.1.

Using (50), (60) and (80), one can show that in the limit of large detunings (condition (4)), and by neglecting the wings of the side-band Raman resonances as well as linear absorption, the power transfer from the atoms to the probe field reads:

$$\mathcal{P} \propto \text{Im} \left\{ \frac{\hbar k \Gamma' \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0) / U_0 \right)}{|\Delta| \alpha / M - i\delta} \text{Tr} \left[S^\dagger \rho_0 S \left(\partial_{\vec{p}} \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(0) \right) \right] \int \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\vec{p}) d\vec{p} \right\} \quad (82)$$

which shows that the power transfer is proportional to the total population of the external states. $\partial_{\vec{p}} \tilde{W}_{0,st}^{(0)}$ only arises from the motion-induced magnetization of the atoms given by (17). One finally obtains:

$$\mathcal{P} \propto \frac{50}{17} \frac{\Gamma^2}{\Delta^2} \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0) / U_0 \right) \frac{\delta(E_R / \hbar)}{\delta^2 + (\alpha / M)^2} \quad (83)$$

The probe transmission spectrum plotted in Fig. 7.a displays a narrow central dispersive resonance of width $2\alpha/M$, in agreement with the prediction of §III.B.1.

Another interesting feature of expression (83) is that it is proportional to the quantity $\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0) / U_0$ which changes sign as U_0 becomes small (limit of small light-shifts). Indeed, as shown in §III.C.3.b.(ii) $\partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0) \approx -26$ is a negative quantity, whereas $\mathcal{F}^{(1)}(0) \approx 2/3$ is a positive one, so that the Rayleigh resonance is expected to change sign for $U_0 \approx 40$. This reversal of the central resonance in the limit of small values of U_0 (associated with a reduction of its width) was observed experimentally [5], and corresponds to a regime where the relaxation processes due to diffusion are more important than those due to the friction force. This may be related to the limit of shallow optical potential wells in the case of lin \perp lin molasses [2]. Note however that for $U_0 < 40$, the sub-Doppler cooling mechanism rapidly becomes inefficient and hence the stationary momentum distribution is much larger than the linearity range of the cooling force, so that our treatment is no more satisfactory. In particular, it would be necessary to take into account both the sub-Doppler and the Doppler cooling mechanisms in order to obtain an accurate estimate of the width of the central resonance.

e. Phase conjugation spectrum

As emphasized in §III.C.1.c, the calculation of the phase-conjugate spectrum involves the same quantities as the probe transmission spectrum. Hence, using the same method as in the previous section, one can show that in the limit of large detunings, the phase-conjugate reflectivity of the probe field reads:

$$\mathcal{R} \propto \left| \rho - \frac{50}{17} \frac{\Gamma^2}{\Delta^2} \left(\mathcal{F}^{(1)}(0) + \partial_u \mathcal{D}^{(1)}(0) / U_0 \right) \frac{(E_R / \hbar)}{i\delta + \alpha/M} \right|^2 \quad (84)$$

where ρ stands for the contribution of the wings of the side-band Raman resonances. The phase conjugation spectrum displayed in Fig. 7.b exhibits a narrow dip of width $2\alpha/M$. This result is in good qualitative agreement with the recent experimental observation of Lounis *et al.* [19].

D. Quantitative investigation of the \perp polarization configuration

The calculation of probe transmission or phase conjugation spectra in the \perp polarization configuration is analogous to the one developed in the preceding section, but presents some fundamental differences due to the fact that in this geometry, the probe beam induces coherences $\tilde{C}^{(1)}(\tilde{p})$ between external states $|\tilde{p} + \hbar k\rangle$ and $|\tilde{p} - \hbar k\rangle$. As a result, the total stationary density matrix $\tilde{\sigma}_{st}$ of the atomic system is here of the form:

$$\tilde{\sigma}_{st} = \tilde{\sigma}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) + \epsilon \left[\tilde{\sigma}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) e^{-i\delta t + 2ik(\tilde{p}/M)t} + \left(\tilde{\sigma}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \right)^\dagger e^{i\delta t - 2ik(\tilde{p}/M)t} \right] \quad (85)$$

where $\tilde{\sigma}_{st}^{(0)}$ is still given by Eq. (40), but $\tilde{\sigma}_{st}^{(1)}$ is now:

$$\tilde{\sigma}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) = \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(1)}(\tilde{p}) + \tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(\tilde{p}) \quad (86)$$

and the only difficulty in the calculation of $\tilde{\sigma}_{st}$ is the derivation of the probe-induced modification of the atomic external state $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p})$. In this section, we use the results of §III.C and we focus on the differences between the two polarization configurations.

1. Side-band Raman resonances

The treatment of side-band Raman resonances is very similar to the one performed for the \parallel polarization configuration. In the \perp polarization geometry also, the probe beam does not affect the atomic external degrees of freedom as long as $|\delta| \gg \alpha/M$ and consequently the last term of (86) reduces to zero. The probe-induced Zeeman coherences between differently populated and

light-shifted ground-state sublevels associated with momenta differing by $2\hbar k$ are described by $\tilde{W}_{0,\text{st}}^{(1)}(\tilde{p})$, which is solution of an equation similar to (53), but where the frequency difference δ between the probe and the cooling beams is *replaced* with $\delta - 2k\tilde{p}/M$. As a result, the side-band Raman resonances exhibit a Doppler broadening of the order of $4k\bar{v}$, and it is not possible to expand $\tilde{W}_{0,\text{st}}^{(1)}$ in powers of the small parameter u and hence to derive the probe transmission spectrum by only considering atoms at rest. A comparison between theoretical Raman spectra for both \parallel and \perp polarization cases is shown in Fig. 9 for probe transmission. As expected, the difference in width between the Raman lines gives an estimate of the Doppler broadening of the molasses.

2. Central Raman resonance

When considering the central resonance of the spectra, one has to take into account the probe-induced modification of the atomic external state characterized by coherences $\tilde{C}^{(1)}(\tilde{p})$, which account for the probe-induced spatial modulation of the atomic density on the scale of $\lambda/2$ (Eq. 26). We show here that contrary to the case of momentum distribution, it is *not* possible to derive the stationary value $\tilde{C}_{\text{st}}^{(1)}(\tilde{p})$ of these coherences from a Fokker-Planck equation.

Let us attempt a naive generalization of the method used in §III.C.1.a for the derivation of $\tilde{\pi}_{\text{st}}^{(1)}$ to the case of external coherences. The analogous of Eq. (45) is:

$$(i\delta + \mathcal{L}') \cdot \tilde{C}_{\text{st}}^{(1)} = \tilde{S}' \quad (87)$$

$$\text{with} \quad \mathcal{L}' \cdot \tilde{C} = -2ik(\tilde{p}/M)\tilde{C} - \partial_{\tilde{p}}(F^{(0)}\tilde{C}) + \partial_{\tilde{p}}(D^{(0)}\partial_{\tilde{p}}\tilde{C}) \quad (88)$$

and \tilde{S}' is a source term depending upon $\tilde{\sigma}_{\text{st}}^{(0)}$. The calculation of $\tilde{C}_{\text{st}}^{(1)}(\tilde{p})$ implies the eigenvalues of operator \mathcal{L}' which read:

$$\lambda'_n = -\frac{\alpha}{M} \left[n + \left(\frac{2k\bar{v}}{\alpha/M} \right)^2 \right] \quad (n = 0, 1, \dots) \quad (89)$$

The smallest damping rate of the external coherences λ'_0 exactly corresponds to the rate γ_{D_z} (Eq. (27)) at which the probe-induced spatial modulation of the atomic density is damped by spatial diffusion. However, as discussed in §II.B.2, spatial diffusion can be considered as a relevant damping mechanism only when $\kappa\bar{v} \ll \alpha/M$, which is actually *not* the case for the present situation where $\kappa = 2k$. It follows that the Fokker-Planck equation (87), which is based on the assumption that spatial diffusion actually contributes to the damping of the atomic density

modulation, is inappropriate for describing the dynamical properties of the external coherences [33].

It thus appear that the exact derivation of $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\bar{p})$ requires a complete quantum treatment of both internal and external atomic degrees of freedom, which is computationally demanding. We propose in appendix III a simplified model to estimate $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\bar{p})$.

IV. Conclusion

In this paper, we have presented theoretical lineshapes for probe transmission and phase-conjugate reflection in 1D σ^+ - σ^- optical molasses. The different resonances of the spectra provide important information about the molasses:

- (i) The occurrence of side-band Raman resonances prove the existence of differently populated and light-shifted ground-state sublevels.
- (ii) When the probe beam has the same polarization as the copropagating cooling beam, the width of the central two-wave mixing resonance gives direct access to the friction coefficient of the cooling force.
- (iii) When the probe beam has the same polarization as the counterpropagating cooling beam, a central Raman (recoil-induced) resonance is expected and its width gives access to the Doppler width, and hence to the temperature of the molasses.

It appears that the present study made for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ atomic transition is in satisfactory agreement with most of the experimental observations [5], [19] performed on a $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ atomic transition. One can thus consider that pump-probe spectroscopy of 1D optical molasses is now well characterized. Nonetheless, it appears that a few questions still need an answer:

- (i) Why recoil-induced resonances (predicted by [9] and our theory) have not been observed on a $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ atomic transition ?
- (ii) Our approach is based on the adiabatic elimination of the atomic internal state, which is known to be questionable in the case of transitions starting from a ground state having an angular momentum significantly larger than 1 [13]. Are there any specific effects associated with the occurrence of internal evolution times longer than the external ones ?

- (iii) What is the width expected for the central resonance in the regime where the sub-Doppler cooling mechanism becomes inefficient ?
- (iv) Is it possible to extend this model to some two-dimensional and three-dimensional molasses ?

Acknowledgements

We would like to thank Y. Castin, J. Dalibard, B. Lounis, C. Salomon, P. Verkerk, P. R. Berman, and C. Cohen-Tannoudji for many helpful discussions.

APPENDIX I

Calculation of the cooling force and of the momentum diffusion coefficient

We show here how it is possible to derive the mean cooling force and the momentum diffusion coefficient in a systematic way. This analysis is based on the method presented in [15] for the case of two-level atoms, and adapted to the case of multilevel atoms by Castin [34].

A. General

In the limit where (3) and (4) are fulfilled, it is possible to adiabatically eliminate both the atomic excited state and the optical coherences, and to obtain a generalized optical Bloch equation for the ground-state density matrix including both the external and the internal degrees of freedom. We consider here this equation after the unitary transformation (11), and for the simplicity of notations, we study the \parallel polarization configuration for which the atom-field coupling is space-independent in the rotating frame (the case of any other probe geometry can be readily treated with the same method):

$$\dot{\tilde{\sigma}} = \frac{1}{i\hbar} [\tilde{H}, \tilde{\sigma}] + (\dot{\tilde{\sigma}})_{\text{relax}} \quad (\text{A.I.1})$$

with
$$\tilde{H} = \frac{P^2}{2M} + \tilde{H}_{\text{eff}} \quad (\text{A.I.2})$$

and
$$(\dot{\tilde{\sigma}})_{\text{relax}} = -\frac{\Gamma'}{2} (\tilde{A}\tilde{\sigma} + \tilde{\sigma}\tilde{A}) + \Gamma' \int_{-\hbar k}^{\hbar k} dq \sum_{m=0,\pm 1} N_m(q) \tilde{B}_m^\dagger e^{-i(q-m\hbar k)Z/\hbar} \tilde{\sigma} e^{i(q-m\hbar k)Z/\hbar} \tilde{B}_m \quad (\text{A.I.3})$$

where Z and P are the *operators* associated with the position z and momentum p of the atom. The Hamiltonian \tilde{H} contains the atomic kinetic energy and the reactive part of the atom-field coupling in the rotating frame given by Eq. (13) for $v = P/M$. An additional recoil term $\frac{k^2 J_z^2}{2M}$ has been neglected (which is justified in the case of a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ atomic transition). The relaxation term corresponding to the dissipative part of the coupling has two contributions. The first one describes the departure from a given ground state sublevel to the others via absorption processes. The second one accounts for the reverse process of feeding one sublevel by the others through

absorption-spontaneous emission cycle. The integral is taken over the momentum q along Oz of the spontaneously emitted photon. Index m represents the projection of the photon angular momentum along Oz, and functions $N_m(q)$ stand for the normalized distribution pattern for the spontaneously emitted photon [35]:

$$N_{\pm 1}(q) = \frac{3}{8\hbar k} \left(1 + \frac{q^2}{\hbar^2 k^2} \right) \quad (\text{A.I.4.a})$$

$$N_0(q) = \frac{3}{4\hbar k} \left(1 - \frac{q^2}{\hbar^2 k^2} \right) \quad (\text{A.I.4.b})$$

The cooling force and the momentum diffusion coefficient are then given by:

$$F(v) = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{d}{dt} \text{tr}(P\sigma) = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{d}{dt} \text{tr}(P\tilde{\sigma}) \quad (\text{A.I.5})$$

$$D(v) = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{2} \frac{d}{dt} \left[\text{tr}(P^2\sigma) - \text{tr}(P\sigma)^2 \right] = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{2} \frac{d}{dt} \left[\text{tr}(P^2\tilde{\sigma}) - \text{tr}(P\tilde{\sigma})^2 \right] \quad (\text{A.I.6})$$

The fact that these quantities can be derived from the atomic density matrix either in the laboratory frame or in the rotating frame is not obvious. Indeed, it is $P+kJ_z$ and *not* P which represents the actual atomic momentum in the rotating frame. However, it is possible to show that kJ_z does not contribute to F and D . It thus appears that both F and D can be expressed in terms of the traces of the matrices:

$$\tilde{W}_n(t) = \int dp p^n \tilde{\sigma}(p, t) \quad (n = 0, 1, 2) \quad (\text{A.I.7})$$

which only depend upon time t . These matrices can be related to the moments of order n of the Wigner matrix used in [15]. In the present case, the evolution equations of \tilde{W}_n are readily deduced from Eq. (A.I.1) and take the form:

$$\frac{d}{dt} \tilde{W}_0 = \tilde{M}_0 \cdot \tilde{W}_0 \quad (\text{A.I.8.a})$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{W}_1 = \tilde{M}_0 \cdot \tilde{W}_1 - \tilde{M}_1 \cdot \tilde{W}_0 \quad (\text{A.I.8.b})$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{W}_2 = \tilde{M}_0 \cdot \tilde{W}_2 - 2\tilde{M}_1 \cdot \tilde{W}_1 + 2\tilde{M}_2 \cdot \tilde{W}_0 \quad (\text{A.I.8.c})$$

The cooling force and the momentum diffusion coefficient are thus given by:

$$F = -\text{tr} \left[\tilde{M}_1 \cdot \tilde{W}_{0,st} \right] \quad (\text{A.I.9})$$

$$D = -\text{tr}[\tilde{M}_1 \cdot \tilde{W}_{1,\text{st}}] + \text{tr}[\tilde{M}_2 \cdot \tilde{W}_{0,\text{st}}] \quad (\text{A.I.10})$$

The second term of the right-hand side of (A.I.10) only accounts for the fluctuations of the momentum carried by spontaneously emitted photons, whereas the first term describes all the other processes such as the fluctuations of the cooling force. $\tilde{W}_{n,\text{st}}$ are the steady-state values of \tilde{W}_n and are solution of equations:

$$\begin{cases} \tilde{M}_0 \cdot \tilde{W}_{0,\text{st}} = 0 \\ \text{tr}[\tilde{W}_{0,\text{st}}] = 1 \end{cases} \quad (\text{A.I.11})$$

$$\tilde{M}_0 \cdot \tilde{W}_{1,\text{st}} = \tilde{M}_1 \cdot \tilde{W}_{0,\text{st}} - \tilde{W}_{0,\text{st}} \text{tr}[\tilde{M}_1 \cdot \tilde{W}_{0,\text{st}}] \quad (\text{A.I.12})$$

B. Probe-induced modifications of F and D

In the presence of the probe beam, the stationary values of \tilde{W}_n exhibit a time dependence at frequency δ . The shortest response time of the atoms being of the order of $1/\Gamma'$, the influence of the probe beam on F and D will be very different in the two limiting cases $|\delta| \gg \Gamma'$ and $|\delta| \ll \Gamma'$. Indeed, in the first case, the probe-induced modifications of the atomic state are too fast for the external degrees of freedom to be affected. One can thus consider that both the mean cooling force and the momentum diffusion coefficient remain unchanged. In contrast, in the second regime, both F and D will be time-modulated at frequency δ . In the following, we only consider the probe-induced modification of F and D to *zeroth* order in the small parameter δ/Γ' .

To first order in ϵ , the quantities \tilde{W}_n , \tilde{M}_n , \tilde{H}_{eff} , \tilde{A} take the generic form:

$$\tilde{X} = \tilde{X}^{(0)} + \epsilon \left[\tilde{X}^{(1)} e^{-i\delta t} + (\tilde{X}^{(1)})^\dagger e^{i\delta t} \right] \quad (\text{A.I.13})$$

where \tilde{X} stands for \tilde{W}_n , \tilde{M}_n , \tilde{H}_{eff} , \tilde{A} . Likewise:

$$\tilde{B}_m = \tilde{B}_m^{(0)} + \epsilon \tilde{B}_m^{(1)} e^{i\delta t} \quad (\text{A.I.14})$$

and similar equation deduced from (61) and (69) for F and D. Using perturbation theory to first order in ϵ , the evolution equations (A.I.8) of the \tilde{W}_n matrices decouple into two parts:

$$\frac{d}{dt} \tilde{W}_0^{(0)} = \tilde{M}_0^{(0)} \cdot \tilde{W}_0^{(0)} \quad (\text{A.I.15.a})$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{W}_1^{(0)} = \tilde{M}_0^{(0)} \cdot \tilde{W}_1^{(0)} - \tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_0^{(0)} \quad (\text{A.I.15.b})$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{W}_2^{(0)} = \tilde{M}_0^{(0)} \cdot \tilde{W}_2^{(0)} - 2\tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_1^{(0)} + 2\tilde{M}_2^{(0)} \cdot \tilde{W}_0^{(0)} \quad (\text{A.I.15.c})$$

and

$$\frac{d}{dt} \tilde{W}_0^{(1)} = \tilde{M}_0^{(0)} \cdot \tilde{W}_0^{(1)} + \tilde{M}_0^{(1)} \cdot \tilde{W}_0^{(0)} \quad (\text{A.I.16.a})$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{W}_1^{(1)} = \tilde{M}_0^{(0)} \cdot \tilde{W}_1^{(1)} - \tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_0^{(1)} + \tilde{M}_0^{(1)} \cdot \tilde{W}_1^{(0)} - \tilde{M}_1^{(1)} \cdot \tilde{W}_0^{(0)} \quad (\text{A.I.16.b})$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \tilde{W}_2^{(1)} = & \tilde{M}_0^{(0)} \cdot \tilde{W}_2^{(1)} - 2\tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_1^{(1)} + 2\tilde{M}_2^{(0)} \cdot \tilde{W}_0^{(1)} + \\ & + \tilde{M}_0^{(1)} \cdot \tilde{W}_2^{(0)} - 2\tilde{M}_1^{(1)} \cdot \tilde{W}_1^{(0)} + 2\tilde{M}_2^{(1)} \cdot \tilde{W}_0^{(0)} \end{aligned} \quad (\text{A.I.16.c})$$

with, for $i = 0, 1$:

$$\tilde{M}_0^{(i)} \cdot W = \frac{1}{i\hbar} \left[\tilde{H}_{\text{eff}}^{(i)}, W \right] - \frac{\Gamma'}{2} (\tilde{A}^{(i)} W + W \tilde{A}^{(i)}) + \Gamma' \sum_{m=0,\pm 1} (\tilde{B}_m^{(i)})^\dagger W \tilde{B}_m^{(0)} \quad (\text{A.I.17})$$

$$\tilde{M}_1^{(i)} \cdot W = -\Gamma' \sum_{m=\pm 1} m\hbar k (\tilde{B}_m^{(i)})^\dagger W \tilde{B}_m^{(0)} \quad (\text{A.I.18})$$

$$\tilde{M}_2^{(i)} \cdot W = \frac{\Gamma'}{2} \sum_{m=0,\pm 1} \left[\langle p^2 \rangle_m + (m\hbar k)^2 \right] (\tilde{B}_m^{(i)})^\dagger W \tilde{B}_m^{(0)} \quad (\text{A.I.19})$$

where $\langle p^2 \rangle_m = \int_{-\hbar k}^{\hbar k} q^2 N_m(q) dq$.

1. Calculation of $F^{(0)}$ and $D^{(0)}$

The cooling force and the momentum friction coefficient in the absence of probe are derived by solving the system (A.I.11) and (A.I.12) where \tilde{M}_i and $\tilde{W}_{i,\text{st}}$ ($i = 0, 1$) are replaced by $\tilde{M}_i^{(0)}$ and $\tilde{W}_{i,\text{st}}^{(0)}$. $F^{(0)}$ and $D^{(0)}$ are then given by:

$$F^{(0)} = -\text{tr} \left[\tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_{0,\text{st}}^{(0)} \right] \quad (\text{A.I.20})$$

$$D^{(0)} = -\text{tr} \left[\tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_{1,\text{st}}^{(0)} \right] + \text{tr} \left[\tilde{M}_2^{(0)} \cdot \tilde{W}_{0,\text{st}}^{(0)} \right] \quad (\text{A.I.21})$$

2. Calculation of $F^{(1)}$ and $D^{(1)}$

One has to solve the system:

$$\tilde{M}_0^{(0)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(1)} = -\tilde{M}_0^{(1)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(0)} \quad (\text{A.I.22.a})$$

$$\tilde{M}_0^{(0)} \cdot \tilde{W}_{1,st}^{(1)} = \tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(1)} - \tilde{M}_0^{(1)} \cdot \tilde{W}_{1,st}^{(0)} + \tilde{M}_1^{(1)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(0)} - \tilde{W}_{0,st}^{(0)} \text{tr} \left[\tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(1)} + \tilde{M}_1^{(1)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(0)} \right] \quad (\text{A.I.22.b})$$

$F^{(1)}$ and $D^{(1)}$ are then given by:

$$F^{(1)} = -\text{tr} \left[\tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(1)} + \tilde{M}_1^{(1)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(0)} \right] \quad (\text{A.I.23})$$

$$D^{(1)} = -\text{tr} \left[\tilde{M}_1^{(1)} \cdot \tilde{W}_{1,st}^{(0)} + \tilde{M}_1^{(0)} \cdot \tilde{W}_{1,st}^{(1)} \right] + \text{tr} \left[\tilde{M}_2^{(1)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(0)} + \tilde{M}_2^{(0)} \cdot \tilde{W}_{0,st}^{(1)} \right] \quad (\text{A.I.24})$$

C. Values of the operators in the \parallel polarization configuration

In the \parallel polarization configuration, the operators used for the derivation of F and D are given by:

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(0)} = kvJ_z + \frac{\hbar\Delta'}{2} (d_1^- + d_{-1}^-) (d_1^+ + d_{-1}^+) \quad (\text{A.I.25.a})$$

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(1)} = \frac{\hbar\Delta'}{2} (d_1^- + d_{-1}^-) (d_1^+) \quad (\text{A.I.25.b})$$

$$\tilde{A}^{(0)} = \frac{1}{2} (d_1^- + d_{-1}^-) (d_1^+ + d_{-1}^+) \quad (\text{A.I.26.a})$$

$$\tilde{A}^{(1)} = \frac{1}{2} (d_1^- + d_{-1}^-) (d_1^+) \quad (\text{A.I.26.b})$$

$$\tilde{B}_m^{(0)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (d_1^- + d_{-1}^-) (d_m^+) \quad (\text{A.I.27.a})$$

$$\tilde{B}_m^{(1)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (d_1^-) (d_m^+) \quad (\text{A.I.27.b})$$

We have used the notation: $d_m^+ = (d_m^-)^\dagger = \sqrt{2J_e + 1} (\bar{D}^+ \cdot \bar{e}_m) / \langle J_e \| \bar{D}^+ \| J_g \rangle$ ($\bar{D}^+ = P_e \bar{D} P_g$ where \bar{D} is the dipole operator and P_e and P_g are the projectors onto the excited and ground state respectively)

where \bar{e}_m stands for the polarization of the electric field ($m = \pm 1, 0$ for a σ^\pm, π -polarized light). The matrix elements of operator d_m^+ are then given by $\langle e, n | d_m^+ | g, v \rangle = \langle J_e, n | J_g, 1, v, m \rangle$ (where $\langle J_e, n | J_g, 1, v, m \rangle$ is the Clebsch-Gordan coefficient connecting levels $|g, v\rangle$ and $|e, n = v + m\rangle$).

APPENDIX II

Limit $u \gg 1$ for $\mathcal{F}^{(1)}$ and $\mathcal{D}^{(1)}$ in the \parallel polarization configuration

We interpret here the different features of $\mathcal{F}^{(1)}$ (Fig. 8.a) and $\mathcal{D}^{(1)}$ (Fig. 8.b) in the limit of large atomic velocity ($u \gg 1$).

A. Probe-induced modification of the cooling force

We use the results and notations of §III.C.4.a. \mathcal{F}_p being mainly the sum of a positive constant and of a term proportional to the atomic magnetization (Eq. (64)) which tends towards zero for $u \gg 1$ (Eq. (18) and Fig. 2.a), one readily finds $\mathcal{F}_p(u \gg 1) \approx \frac{1}{3}$. Because $u \gg 1$, the predominant term of the effective Hamiltonian $\tilde{H}_{\text{eff}}^{(0)}$ is V_{rot} , and we thus use the basis $\{|g, -1\rangle, |g, 0\rangle, |g, 1\rangle\}$ for characterizing the atomic internal state and for estimating \mathcal{F}_B . Because the operator J_z describing the effect of the probe is diagonal in this basis, the time-modulated population modification of the ground-state Zeeman sublevels only arises from probe-induced modifications of the optical pumping processes. These processes, which account for absorption of σ^+ or σ^- photons from the laser waves followed by spontaneous emission, are characterized by departure rates proportional to the intensities of the σ^+ (I_+) and σ^- (I_-) components of light. In the case of a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ transition, the stationary values π_m of the populations of the ground-state Zeeman sublevels $|g, m\rangle$ are solutions of the system:

$$\begin{cases} 0 = -\frac{5}{36} I_+ \pi_{-1} + \frac{1}{4} I_- \pi_0 + \frac{1}{36} I_- \pi_1 \\ 0 = -\frac{1}{4} (I_- + I_+) \pi_0 + \frac{1}{9} I_+ \pi_{-1} + \frac{1}{9} I_- \pi_1 \\ 0 = -\frac{5}{36} I_- \pi_1 + \frac{1}{4} I_+ \pi_0 + \frac{1}{36} I_+ \pi_{-1} \\ 1 = \pi_{-1} + \pi_0 + \pi_1 \end{cases} \quad (\text{A.II.1})$$

Using perturbation theory to first order in ϵ , this system readily transforms into:

$$\begin{cases} \pi_m = \pi_m^{(0)} + 2\epsilon\pi_m^{(1)} \cos(\delta t) \\ I_+ = I_+^{(0)} + 2\epsilon I_+^{(1)} \cos(\delta t) \\ \pi_{-1}^{(0)} = \pi_1^{(0)} = \frac{9}{22} ; \pi_0^{(0)} = \frac{4}{22} \\ \pi_1^{(1)} = -\pi_{-1}^{(1)} = \frac{15}{44} ; \pi_0^{(1)} = 0 \end{cases} \quad (\text{A.II.2})$$

which leads to $\mathcal{F}_B(u \gg 1) \approx \frac{15}{44} \approx \frac{1}{3}$. Finally, for $u \gg 1$, one finds $\mathcal{F}^{(1)} \approx 2/3$, in good agreement with the curve of Fig. 8.a.

B. Probe-induced modification of the momentum diffusion coefficient

We use the results and notations of §III.C.4.b. The estimate of \mathcal{D}_p is readily deduced from Eqs (23) and (74) which lead to $\mathcal{D}_p(u \gg 1) \approx \frac{1}{2}\mathcal{D}^{(0)}(\infty) \approx \frac{4}{3}$. As for the preceding calculation of \mathcal{F}_B , we use the basis $\{|g, -1\rangle, |g, 0\rangle, |g, 1\rangle\}$ for estimating \mathcal{D}_B , by characterizing the modification of the atomic internal state which arises from probe-induced modifications of the optical pumping processes. These modifications unbalance the probabilities to absorb σ^+ (σ^-) photons from the cooling beams (which are equal in the absence of the probe beam). In order to estimate the influence of this effect on momentum diffusion, we use the simple probabilistic model introduced in [13]. Let us consider the momentum of an atom after $N \gg 1$ absorption-spontaneous emission cycles. The increase in atomic momentum along Oz reads:

$$\Delta p = (N_+ - N_-)\hbar k + \sum_{i=1}^{N_+ + N_-} (\hbar \bar{k}_i)_z \quad (\text{A.II.3})$$

where N_\pm is the number of σ^\pm absorbed photons and $\hbar \bar{k}_i$ is the momentum of the i -th fluorescence photon. To first order in ϵ , N_\pm is of the form:

$$N_\pm = N_\pm^{(0)} [1 \pm \epsilon \cos(\delta t) \eta] \quad (\text{A.II.4})$$

where $N_\pm^{(0)}$ corresponds to the value of N_\pm in the absence of the probe beam, and η accounts for the modification of the probabilities to absorb σ^+ or σ^- photons from the cooling beams due to the probe-induced magnetization given by Eq. (A.II.2). For a given total number of absorptions $N = N_+ + N_-$ the average change in atomic momentum is:

$$\langle \Delta p \rangle_N = \epsilon \cos(\delta t) N \eta \quad (\text{A.II.5})$$

because in the limit $u \gg 1$ and in the absence of the probe beam, the magnetization of the atom is equal to zero, and thus $\langle N_+^{(0)} \rangle = \langle N_-^{(0)} \rangle$. Note that $\langle (\hbar \bar{k}_i)_z \rangle = 0$ because spontaneous emission occurs with the same probability in two opposite directions. Similarly, the square increase of the atomic momentum along Oz reads:

$$\langle \Delta p^2 \rangle_N = \langle (N_+ - N_-)^2 \rangle_N (\hbar k)^2 + \left\langle \sum_{i=1}^N (\hbar \bar{k}_i)_z^2 \right\rangle_N \quad (\text{A.II.6})$$

The last term of (A.II.6) corresponds to the fluctuations of the total momentum carried by the fluorescence photons and can be demonstrated to be negligible compared with the first term which accounts for fluctuations of the cooling force. As shown in [13], in the limit $N \gg 1$, one has $\langle (N_+^{(0)} - N_-^{(0)})^2 \rangle_N \approx 9N$ and hence, to first order in ϵ , $\langle \Delta p^2 \rangle_N \approx 9N(\hbar k)^2$. The momentum diffusion coefficient D is then given by:

$$2DT = \langle \Delta p^2 \rangle - \langle p \rangle^2 \quad (\text{A.II.7})$$

where $\langle \rangle$ denotes the average over all the realizations of N during a time T. One readily deduces from (A.II.5), (A.II.6), and (A.II.7) that to first order in ϵ , D is *independent* of the probe-induced modification of the atomic internal state, and one thus has $\mathcal{D}_B(u \gg 1) \approx 0$. Finally, one finds $\mathcal{D}^{(1)}(u \gg 1) \approx 4/3$, in good agreement with the curve of Fig. 8.b.

APPENDIX III

Simplified derivation of the recoil-induced resonance in the \perp polarization configuration

A. Calculation of the probe-induced external coherences

We propose here a simplified method to estimate $\tilde{C}_{st}^{(1)}(\vec{p})$. We start from Eq. (87) where the terms describing diffusion are removed in order to eliminate any physical inconsistency. Because coherences $\tilde{C}^{(1)}(\vec{p})$ involve levels whose lifetime is of the order of M/α , we expect $\tilde{C}^{(1)}(\vec{p})$ to be damped at a rate γ of the order of α/M . Hence, we substitute a phenomenological term $-\gamma \tilde{C}(\vec{p})$ for $-\partial_{\vec{p}}(F^{(0)} \tilde{C})$ into Eq. (88). One thus obtains:

$$i[\delta - 2k(\tilde{p}/M)]\tilde{C}_{st}^{(1)} - \gamma\tilde{C}_{st}^{(1)} = \tilde{S}' \quad (\text{A.III.1})$$

The first term of the left-hand side of Eq. (A.III.1) corresponds to the hamiltonian evolution of the coherences at frequency $\delta - 2k\tilde{p}/M$, and \tilde{S}' is the source term for the coherences. By analogy with expression (46), one expects \tilde{S}' to be of the form:

$$\tilde{S}' = \partial_{\tilde{p}} \left(F^{(1)} \tilde{\pi}_{st}^{(0)} \right) \quad (\text{A.III.2})$$

where $F^{(1)}$ describes the probe-induced modification of the cooling force (the diffusion term has been removed).

a. Probe-induced modification of the cooling force

The calculation of $F^{(1)}$ is similar to the one performed in the \parallel polarization configuration. We first consider the dimensionless quantity:

$$\mathcal{F} = \mathcal{F}^{(0)} + \varepsilon \left(\mathcal{F}^{(1)} e^{-i(\delta - 2k\tilde{p}/M)t} + \left(\mathcal{F}^{(1)} \right)^* e^{i(\delta - 2k\tilde{p}/M)t} \right) \quad (\text{A.III.3})$$

and we derive $\mathcal{F}^{(1)}$ which, to lowest order in Γ/Δ and to first order in u , is equal to:

$$\mathcal{F}^{(1)} = i \frac{5|\Delta|}{17\Gamma} (2 + 5u) \quad (\text{A.III.4})$$

Because we are considering a simplified model in the limit $u \ll 1$, and because $\partial_u \mathcal{F}^{(1)}$ is of the order of $\mathcal{F}^{(1)}(0)$, $\mathcal{F}^{(1)}$ is approximated by $\mathcal{F}^{(1)}(0)$ in the following. $\mathcal{F}^{(1)}$ is thus a pure imaginary quantity that we interpret as follows. Combining the σ^- -polarized probe with the σ^- -polarized counterpropagating pump beam, one obtains a σ^- -polarized wave whose intensity exhibits a time-modulated part proportional to $\varepsilon \cos(\delta t - 2kz)$, and which modifies the light-shifted energies of the ground state Zeeman sublevels of an atom at rest according to:

$$\begin{cases} E_A = \frac{\hbar\Delta'}{2} + \varepsilon \frac{7\hbar\Delta'}{12} \cos(\delta t - 2kz) \\ E_0 = \frac{\hbar\Delta'}{2} + \varepsilon \frac{\hbar\Delta'}{2} \cos(\delta t - 2kz) \\ E_S = \frac{2\hbar\Delta'}{3} + \varepsilon \frac{7\hbar\Delta'}{12} \cos(\delta t - 2kz) \end{cases} \quad (\text{A.III.5})$$

which shows that the probe beam induces a spatio-temporal modulation of the light-shifts. As in the case of Sisyphus cooling [7], this modulation results into a dipole force associated with photon

redistribution between the probe and the counterpropagating cooling beams. This force is equal to the sum of the gradient of the light-shifted energies, weighted by the steady-state populations of the corresponding levels. Combining (A.III.5) and (10), one finds $\mathcal{F}^{(1)} \approx i \frac{9.6 |\Delta|}{17 \Gamma}$ which is in good agreement with Eq. (A.III.4). Note that this force is responsible for the spatial modulation of the atomic density.

b. Probe-induced modification of the atomic density matrix

Combining Eqs (A.III.1) and (A.III.2), one obtains:

$$\tilde{C}_{st}^{(1)}(\tilde{p}) \approx \frac{\hbar k \Gamma' \mathcal{F}^{(1)}(0) \partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi}_{st}^{(0)}}{i(\delta - 2k\tilde{p}/M) - \gamma} \quad (\text{A.III.6})$$

which shows that external coherences $\tilde{C}_{st}^{(1)}$ are proportional to the *derivative* of the steady-state momentum distribution $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p})$. This accounts for the fact that Raman transition rates depend on the population *difference* between external states [36].

B. Probe transmission spectrum

As shown in (50), the power transfer \mathcal{P} from the atoms to the probe field implies the mean value of operator \wp' (Eq. (51)) for the modified density matrix in the laboratory frame $\sigma_{st}^{(1)}$. In the \perp polarization configuration of the probe, \wp' can be expressed as:

$$\wp' = \frac{1}{24} \left(16 I e^{-2ikZ} - 10 e^{-2ikZ} J_z / \hbar - e^{-2ikZ} (J_+ J_- + J_- J_+) / \hbar^2 + 2(J_+)^2 / \hbar^2 \right) \quad (\text{A.III.7})$$

The last term of (A.III.7) stands for the effects due to the *forward scattering* of the pump wave which copropagates with the probe and which undergoes a polarization modification due to a probe-induced alignment in the atomic sample. The other terms represent contributions due to the *backscattering* of the counterpropagating cooling beam on the space-modulated atomic density (first term), magnetization (second term), and alignment (third term) induced by the probe. The three last terms have a small contribution compared to the first term (the magnetization of a low velocity atom is of the order of $\hbar u \ll \hbar$, see Eq. (17)). It follows that the central structure of the probe transmission spectrum mainly results from the occurrence of a *spatial modulation of the atomic density* in the molasses induced by the probe beam.

Using (50) and (A.III.6), one finds that in the limit of large detunings, and by neglecting the wings of the side-band Raman resonances, the power transfer from the atoms to the probe field reads:

$$\mathcal{P} \propto -\text{Im} \left[\frac{\Gamma F^{(1)}(0)}{|\Delta|} \int \frac{\partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi}_{st}^{(0)}}{i(\delta - 2k\tilde{p}/M) - \gamma} \text{Tr} \left[S^\dagger \rho' S \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(\tilde{p}) \right] d\tilde{p} \right] \quad (\text{A.III.8})$$

where the integral appears as a convolution product in $\tilde{p} = M\delta/2k$ of $\partial_{\tilde{p}} \tilde{\pi}_{st}^{(0)}(\tilde{p})$ and:

$$\frac{M/2k}{\tilde{p} + i\gamma M/2k} \approx M/2k \left[\mathcal{V}(1/\tilde{p}) - i\pi \delta(\tilde{p}) \right] \quad (\text{A.III.9})$$

where \mathcal{V} denotes the principal value function and δ is the Dirac function (we have used the fact that $\gamma M/2k \ll M\bar{v}$ in the case of a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ atomic transition). Hence, using Eqs (56) and (A.III.4), Eq. (A.III.8) transforms into:

$$\mathcal{P} \propto -\frac{5\sqrt{\pi/2}}{17} \frac{\hbar\Gamma'}{k_B T} \frac{\delta}{2k\bar{v}} e^{-\delta^2/2(2k\bar{v})^2} \text{Tr} \left[S^\dagger \rho' S \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(M\delta/2k) \right] \quad (\text{A.III.10})$$

Finally, using the approximation $\tilde{W}_{0,st}^{(0)}(M\delta/2k) \approx \tilde{W}_{0,st}^{(0)}(0)$, one finds that the power transfer from the atoms to the probe field takes the simple form:

$$\mathcal{P} \propto -\frac{50\sqrt{\pi/2}}{289} \frac{\hbar\Gamma'}{k_B T} \frac{\delta}{2k\bar{v}} e^{-\delta^2/2(2k\bar{v})^2} \quad (\text{A.III.11})$$

The total probe transmission spectrum is plotted in Fig. 10 with $\hbar|\Delta'| = 2000 E_R$ and a detuning $\Delta = -10\Gamma$. It displays a narrow central Raman recoil-induced resonance of width $4k\bar{v} \approx 116 E_R/\hbar$.

REFERENCES

- [1] P. Verkerk, B. Lounis, C. Salomon, C. Cohen-Tannoudji, J.-Y. Courtois and G. Grynberg, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3861 (1992).
- [2] J.-Y. Courtois and G. Grynberg, *Phys. Rev. A* **46**, 7060 (1992).
- [3] B. Lounis, P. Verkerk, C. Salomon, J.-Y. Courtois and G. Grynberg, *Europhys. Lett.* **21**, 13 (1993).
- [4] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *J.O.S.A. B* **6**, 2023 (1989).
- [5] B. Lounis, J.-Y. Courtois, P. Verkerk, C. Salomon and G. Grynberg, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3029 (1992).
- [6] D. Grison, B. Lounis, C. Salomon, J.-Y. Courtois and G. Grynberg, *Europhys. Lett.* **15**, 149 (1991) ; J. W. R. Tabosa, G. Chen, Z. Hu, R. B. Lee and H. J. Kimble, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3245 (1991).
- [7] C. Cohen-Tannoudji, in *Fundamental Systems in Quantum Optics, Les Houches, session LIII*, J. Dalibard, J. M. Raimond and J. Zinn-Justin eds (Elsevier Science Publisher B. V., 1992), p. 1.
- [8] P. Martin, in *Many-Body Physics, Les Houches 1967*, C. de Witt and R. Balian eds (Gordon and Breach, 1968) ; see also C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, in *Photons and atoms*, (Wiley, New-York, 1989), p. 352.
- [9] J. Guo, P. R. Berman, B. Dubetsky and G. Grynberg, *Phys. Rev. A* **46**, 1426 (1992) ; J. Guo and P. R. Berman, *Phys. Rev. A* **47**, 4128 (1993).
- [10] P. J. Ungar, D. S. Weiss, E. Riis and S. Chu, *J.O.S.A. B* **6**, 2058 (1989).
- [11] J.-P. Barrat and C. Cohen-Tannoudji, *J. Phys. (Paris)*, **22**, 329 (1961).
- [12] G. Nienhuis, P. Van der Straten, S.-Q. Shang, *Phys. Rev. A* **44**, 462 (1991).
- [13] Y. Castin and K. Mølmer, *J. Phys. B* **23**, 4101 (1990).

- [14] This is perfectly valid for the case of a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ atomic transition. However, for sufficiently large values of J_g , the evolution time of the internal variables can become larger than the one of the external degrees of freedom [13]. In that case, the adiabatic elimination of the internal variable is not achievable and a full quantum treatment including both the internal and the external degrees of freedom may be necessary for satisfactorily reproducing the spectra.
- [15] K. Berg-Sørensen, E. Bonderup, K. Mølmer and Y. Castin, *J. Phys. B* **25**, 4195 (1992).
- [16] In the case of a 1D σ^+ - σ^- molasses where atoms are not spatially localized, no Lamb-Dicke lengthening of the damping times should occur (see [2]).
- [17] It must be kept in mind that this momentum stands for, but *does not represent* the actual momentum of the atom, which is associated with the observable $P + kJ_z$.
- [18] In a pure 1D problem, the only nonzero wavevector is $\kappa = 2k$. We use notation κ for possibly including the case of a probe beam making a small angle with the cooling beams.
- [19] B. Lounis, P. Verkerk, C. Salomon, J.-Y. Courtois and G. Grynberg, *Nonlin. Opt.*, accepted for publication.
- [20] Quantization of atomic motion is more appropriate to emphasize the fundamental differences between the \parallel and \perp polarization configurations concerning the off-diagonality of the atomic density matrix in momentum space. However, as will be shown in the following sections, a classical type description of atomic motion in terms of Fokker-Planck equations also allows to account for the effect of the probe on the atomic medium.
- [21] C. Cohen-Tannoudji and J. Dupont-Roc, *Phys. Rev. A* **5**, 968 (1972).
- [22] The tensor part of the light-shift Hamiltonian is smaller than the fictitious magnetic field part because of the Clebsch-Gordan coefficients, and can be omitted for simplicity (see §III.C.3.b).
- [23] B. Sheehy, S. Shang, P. Van der Straten, S. Hatamian and H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 858 (1990).

- [24] Whereas this energy transfer is only sensitive to the $\sin(\delta t)$ component of $\langle J_z(\langle v \rangle) \rangle$, other signals such as the four-wave mixing phase conjugation depend on both components of $\langle J_z(\langle v \rangle) \rangle$. Note however that an important contribution to the central resonance of the phase conjugation spectrum arises from the interference of $\langle J_z(\langle v \rangle) \rangle$ with the wings of the side-band Raman resonances.
- [25] G. Grynberg and P. R. Berman, Phys. Rev. A **39**, 4016 (1989).
- [26] G. Grynberg, M. Vallet, M. Pinard, Phys. Rev. Lett. **65**, 701 (1990).
- [27] A. R. Bogdan, M. C. Downer and N. Bloembergen, Opt. Lett. **6**, 348 (1981).
- [28] M. Vallet, M. Pinard and G. Grynberg, Opt. Comm. **87**, 340 (1992).
- [29] Note that in the case of atomic transitions such as the $J_g=4 \rightarrow J_e=5$ transition of cesium, the situation is more complex because of the occurrence of many different allowed Raman transitions between various light-shifted and populated ground-state sublevels, associated with resonances having different widths and positions. Depending on the experimental conditions, this may result into spectra displaying more than two side-band resonances (limit of large detunings) or slightly broadened Raman resonances (experimental conditions of [5]).
- [30] G. Grynberg, E. Le Bihan and M. Pinard, J. Phys. (Paris) **47**, 1321 (1986) ; M. T. Gruneisen, K. R. MacDonald and R. W. Boyd, J.O.S.A. B **5**, 123 (1988).
- [31] Because it is $P + kJ_z$ and *not* P which represents the actual atomic momentum in the rotating frame, $\tilde{\pi}_{st}^{(0)}$ does not correspond to the actual momentum distribution, and T is not exactly the molasses temperature. However, it is easy to check that kJ_z does not significantly contribute to the molasses temperature.
- [32] $\mathcal{F}_{\text{reac}}^{(1)}$ stands for the modification of photon redistribution processes due to the probe beam. Because our approach is linear in the probe amplitude this modification arises from only two processes. First, photon redistribution between the σ^+ -polarized probe and the σ^- -polarized counterpropagating pump beam takes place because of the Zeeman coherence between $|g, 1\rangle$ and $|g, -1\rangle$ induced by the cooling beams (photon redistribution between copropagating waves does not modify the cooling force). Second, the probe-induced modification of this coherence results into a modification of photon redistribution between the two pump beams. $\mathcal{F}_{\text{reac}}^{(1)}$ is negligible compared with

$\mathcal{F}_{\text{diss}}^{(1)}$ because redistribution processes are limited to a finite number in corkscrew molasses.

- [33] In the case where the probe beam is σ^+ -polarized and makes a small nonzero θ angle with the σ^+ -polarized cooling beam, a spatial modulation of the atomic density occurs on a scale much larger than λ , so that $\kappa\bar{v} \ll \alpha/M$, and a Fokker-Planck description of external coherences becomes relevant. Note however that this also implies that $\lambda'_n \approx \lambda_n$, which means that the spectra are expected to be similar as in the case $\theta = 0$, and that spatial diffusion never plays any significant role in the damping of external coherences.
- [34] Y. Castin, Ph.D. thesis, Paris VI University, Paris (1992).
- [35] J. Javanainen and S. Stenholm, *Appl. Phys.* **21**, 35 (1980).
- [36] Two-wave mixing processes are not included in our simple model. They would lead to a contribution involving the momentum distribution (and not its derivative) in the expression of $\tilde{C}_{\text{st}}^{(1)}$.

Figure Captions

- FIG. 1 Polarization of the cooling field in a 1D corkscrew optical molasses and associated light-shifted ground-state Zeeman sublevels for a $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ atomic transition. (a) The cooling wave results from the superposition of two circularly cross-polarized counterpropagating beams having same intensity and wavelength λ . The resulting polarization is linear at each point but rotates in space and forms an helix. (b) As a result from the constant ellipticity of the cooling wave, the light-shifted energies of the ground-state Zeeman sublevels do not vary with z .
- FIG. 2 Dimensionless cooling force $\mathcal{F}^{(0)}$ and momentum diffusion coefficient $\mathcal{D}^{(0)}$ in the absence of the probe beam versus u for a laser detuning $\Delta = -5\Gamma$. (a) The cooling force has a dispersion shape, and reduces to a pure friction force in the limit $u \ll 1$. (b) The momentum diffusion coefficient has a Lorentzian shape, and is larger at high than at low velocities.
- FIG. 3 Schematic experimental set-up for pump-probe spectroscopy. The intensity of the probe beam (frequency ω_p) after transmission through the molasses is monitored by means of photodiode PD1. A plate located on the path followed by the probe beam is used to collect the phase-conjugate reflected beam (frequency $2\omega - \omega_p$) whose intensity is measured by means of photodiode PD2. The angle between the probe and the cooling beams has been exaggerated for clarity.
- FIG. 4 Spatial dependence of the laser fields in the rotating frame. (a) The linear polarization of the cooling field (represented by bold arrows) rotates in the laboratory frame as one moves along Oz , but keeps a constant direction in the rotating frame (represented by two orthogonal plain arrows). (b) In the \parallel polarization configuration, the spatial dependence of the instantaneous direction of the probe field (located by the tip of the bold arrows) is compensated for in the rotating frame. As a result, the probe-induced atom-field interaction terms are space-independent in the rotating frame. (c) In contrast, this compensation does not occur in the \perp polarization configuration, and the probe-induced atom-field interaction terms are space-dependent in the rotating frame.
- FIG. 5 Probe-induced stimulated transitions in the \parallel polarization configuration. The probe field is represented by a gray line, and the cooling field by a black line. (a) Stimulated

Raman amplification of the probe beam ($\omega_p < \omega$). (b) Stimulated Raman absorption of the probe beam ($\omega_p > \omega$). (c) Examples of stimulated Rayleigh transitions ($\omega_p \approx \omega$).

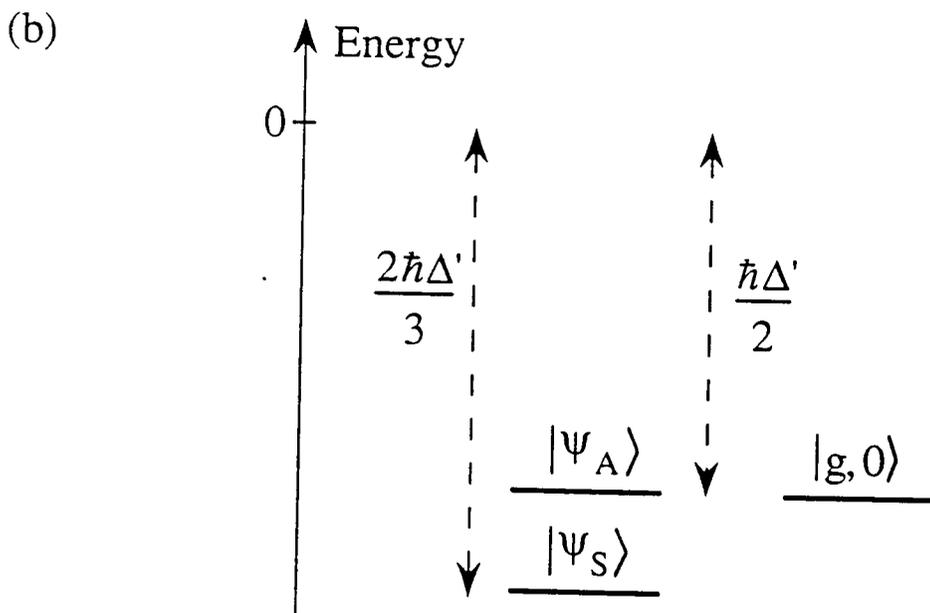
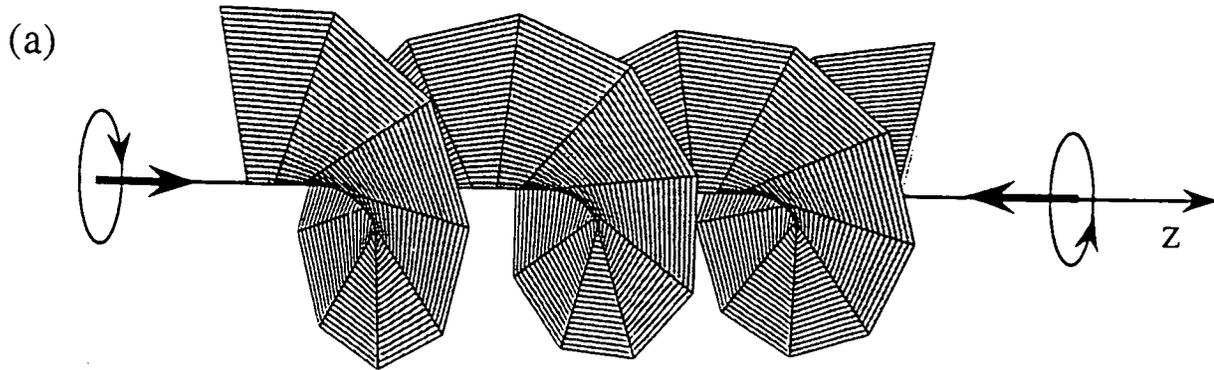
FIG. 6 Probe-induced stimulated transitions in the \perp polarization configuration. The probe field is represented by a gray line, and the cooling field by a black line. (a) Stimulated Raman amplification of the probe beam ($\omega_p < \omega$). (b) Stimulated Raman absorption of the probe beam ($\omega_p > \omega$). (c) Example of stimulated Raman transition between states differently populated and belonging to the continuum associated with the momentum distribution ($\omega_p \approx \omega$).

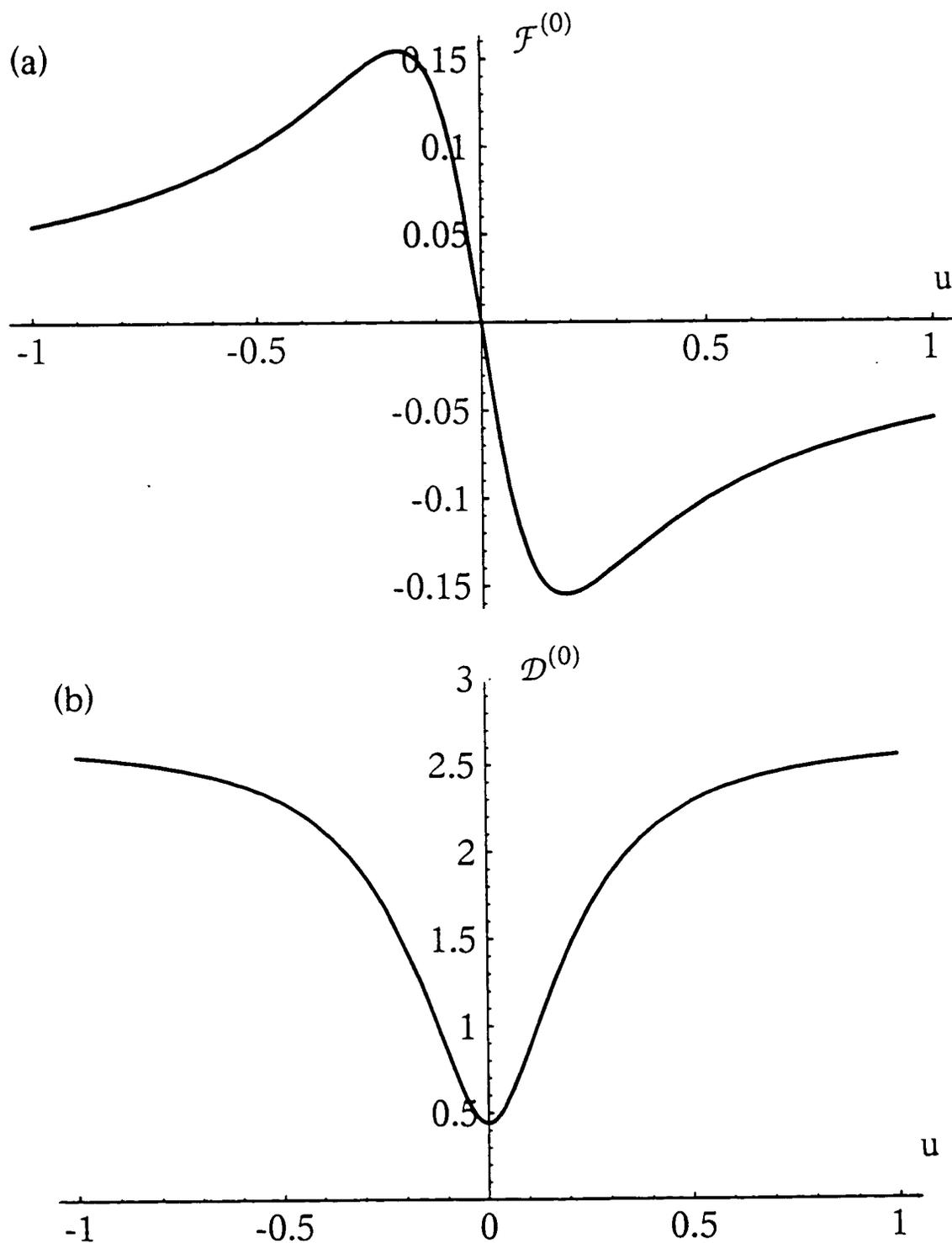
FIG. 7 Probe transmission and phase conjugation spectra in the \parallel polarization configuration versus $\hbar\delta/E_R$ for $\hbar|\Delta'| = 200E_R$ and a detuning $\Delta = -5\Gamma$. Linear absorption is not taken into account. (a) Probe transmission. Stimulated side-band Raman lines have the same width of the order of Γ' , but different weights because the Clebsch-Gordan coefficients involved in absorption and amplification are not the same. A dispersive Rayleigh resonance having a width $2\alpha/M$ is clearly visible in the center of the spectrum. (b) Intensity of the four-wave mixing phase-conjugate emission. A dip having a width $2\alpha/M$ appears in the center of the spectrum.

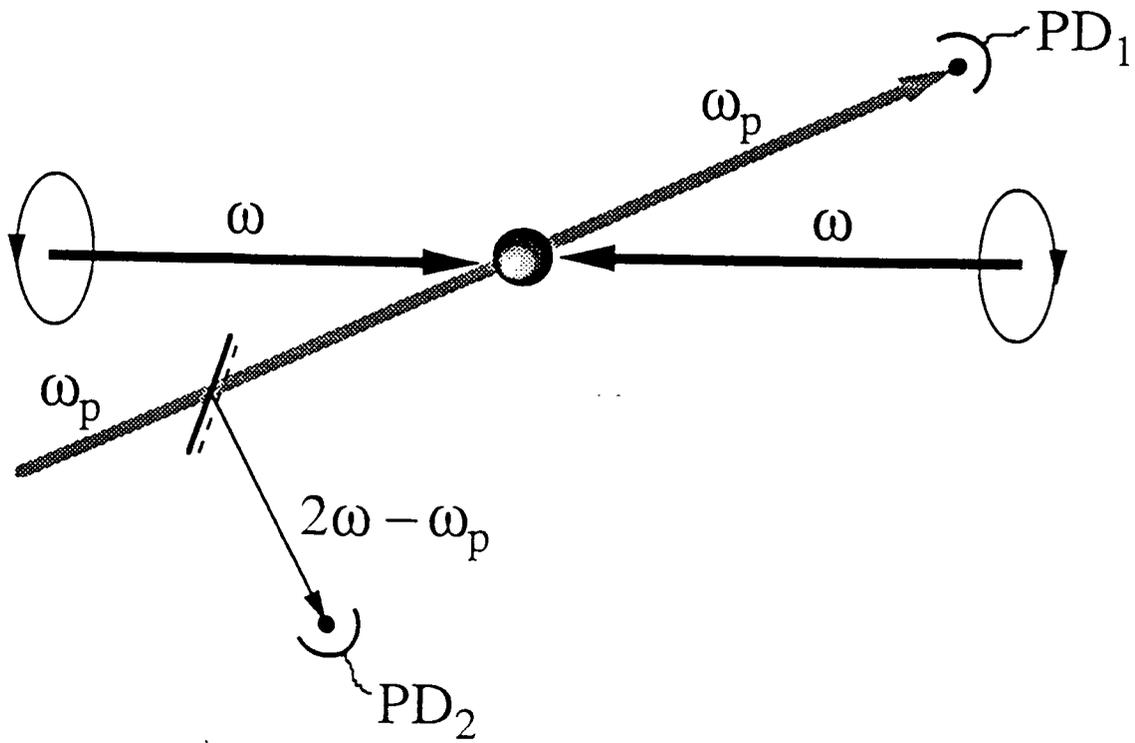
FIG. 8 Modifications of the dimensionless cooling force $\mathcal{F}^{(1)}$ and of the momentum diffusion coefficient $\mathcal{D}^{(1)}$ due to the presence of the probe beam versus u for a laser detuning $\Delta = -5\Gamma$. (a) The probe-induced modification of the cooling force is a purely real, positive quantity. (b) Real part of the probe-induced modification of the momentum diffusion coefficient. Note that $\mathcal{D}^{(1)}$ changes sign for small positive values of u .

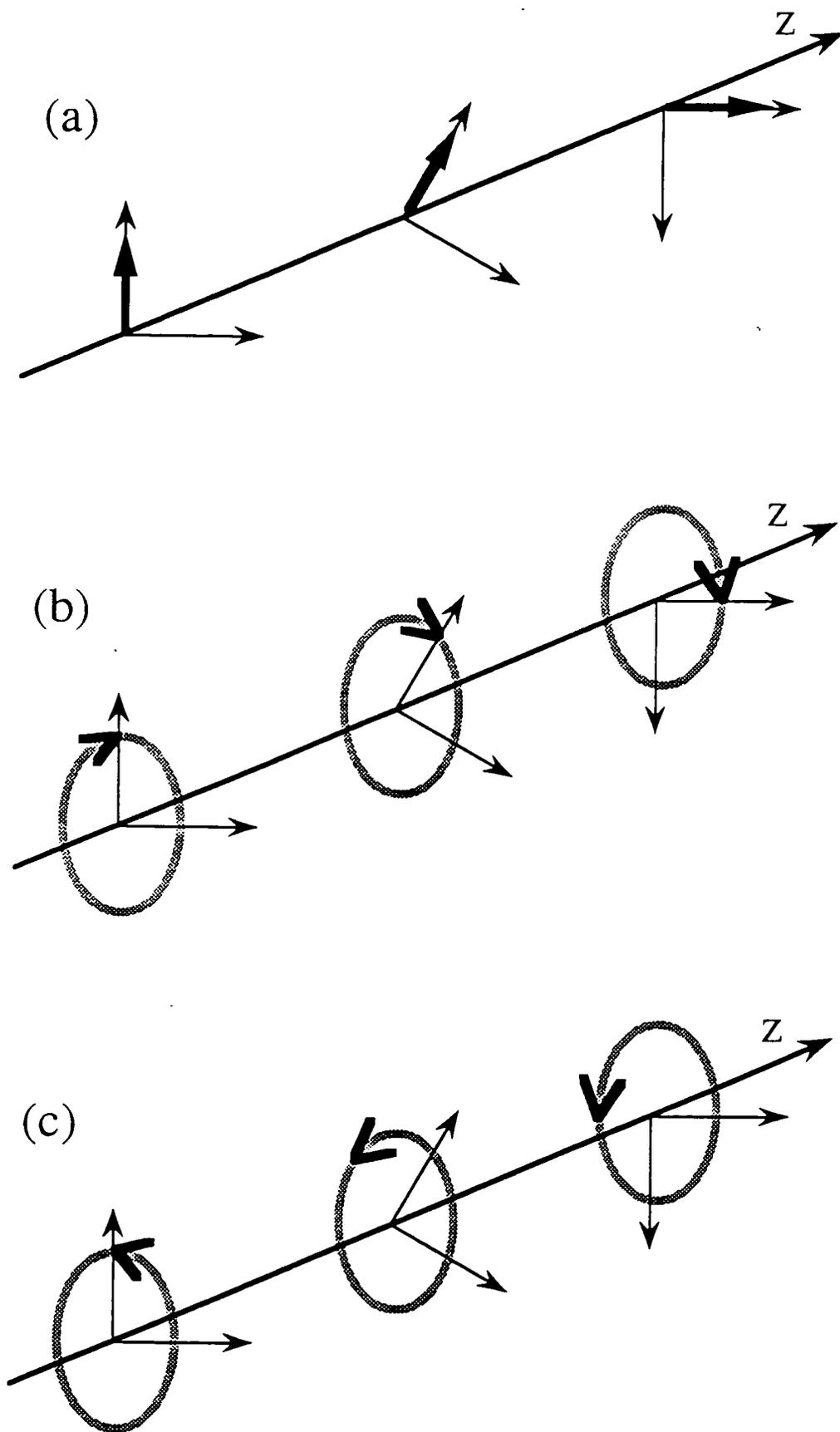
FIG. 9 Comparison between probe transmission Raman spectra in the \parallel (a) and \perp (b) polarization configurations versus $\hbar\delta/E_R$ for $\hbar|\Delta'| = 200E_R$ and a detuning $\Delta = -5\Gamma$. Note that the width of side-band resonances is larger in (b) than in (a). The difference in width is of the order of the Doppler width of the molasses $k\bar{v} \approx 10E_R/\hbar$.

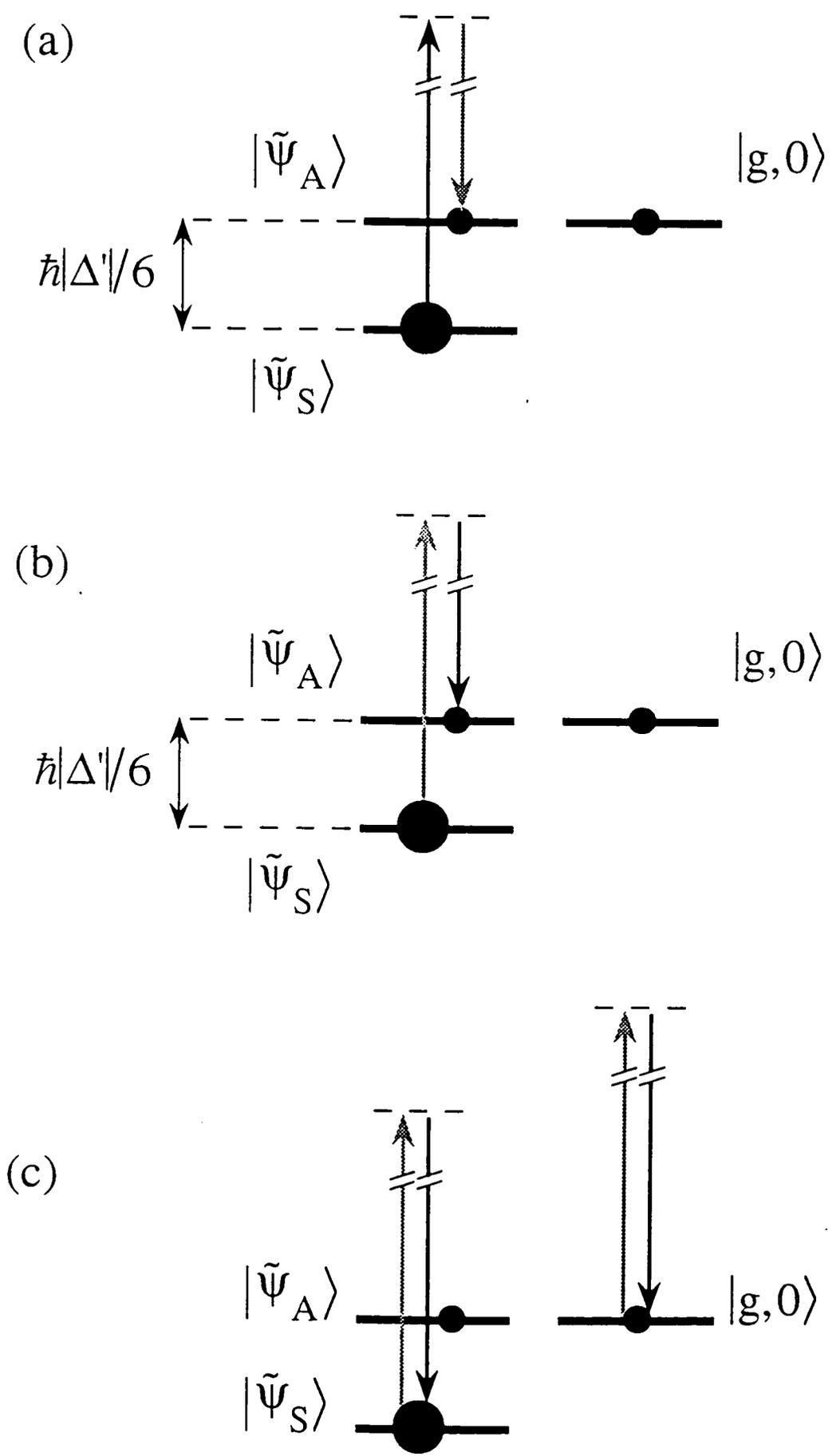
FIG. 10 Probe transmission spectrum in the \perp polarization configuration versus $\hbar\delta/E_R$ for $\hbar|\Delta'| = 2000E_R$ and a detuning $\Delta = -10\Gamma$, deduced from the simplified model of appendix III. Linear absorption is not taken into account. A central recoil-induced resonance having a width $4k\bar{v} \approx 116E_R/\hbar$ is clearly visible in the center of the spectrum.

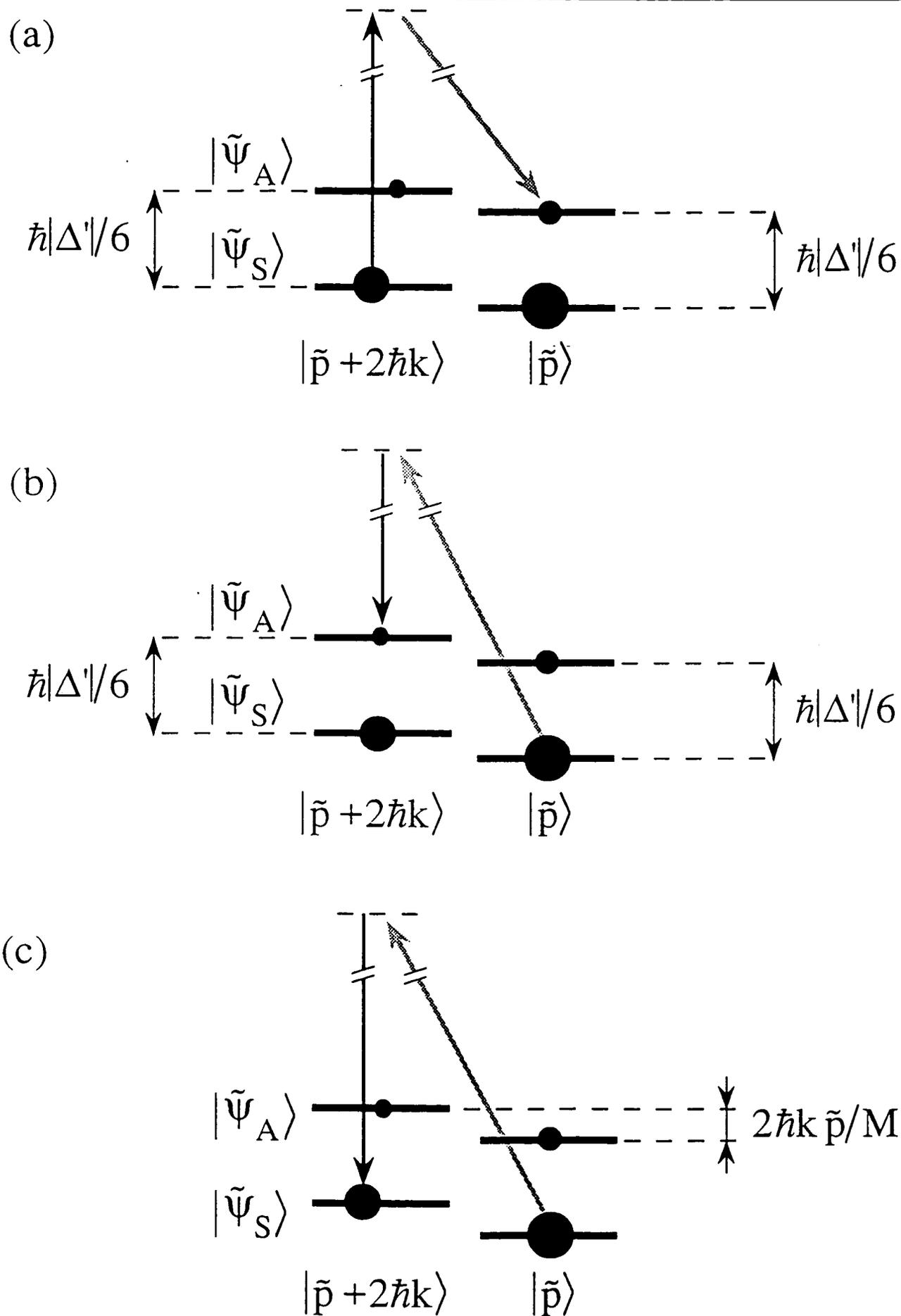


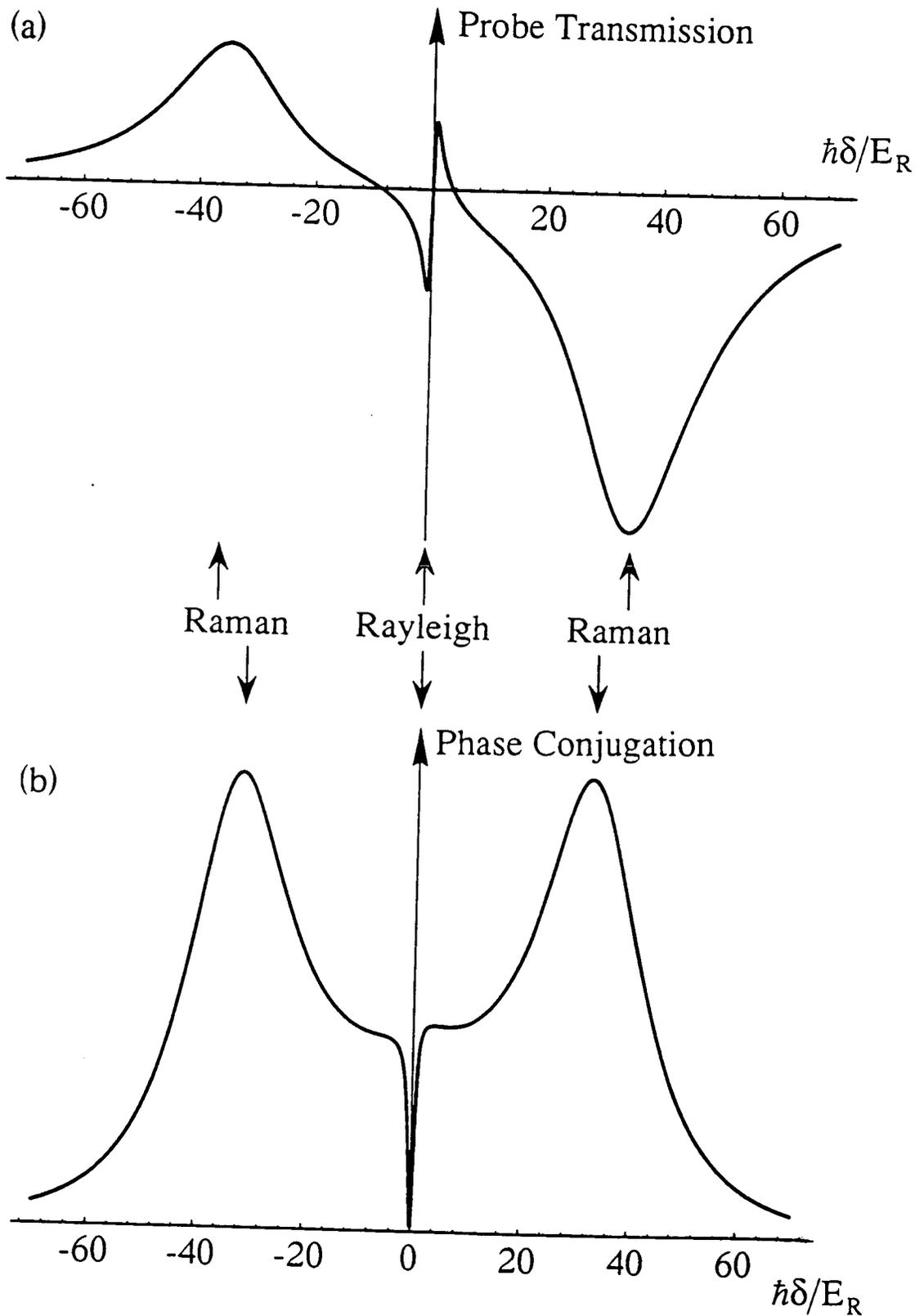


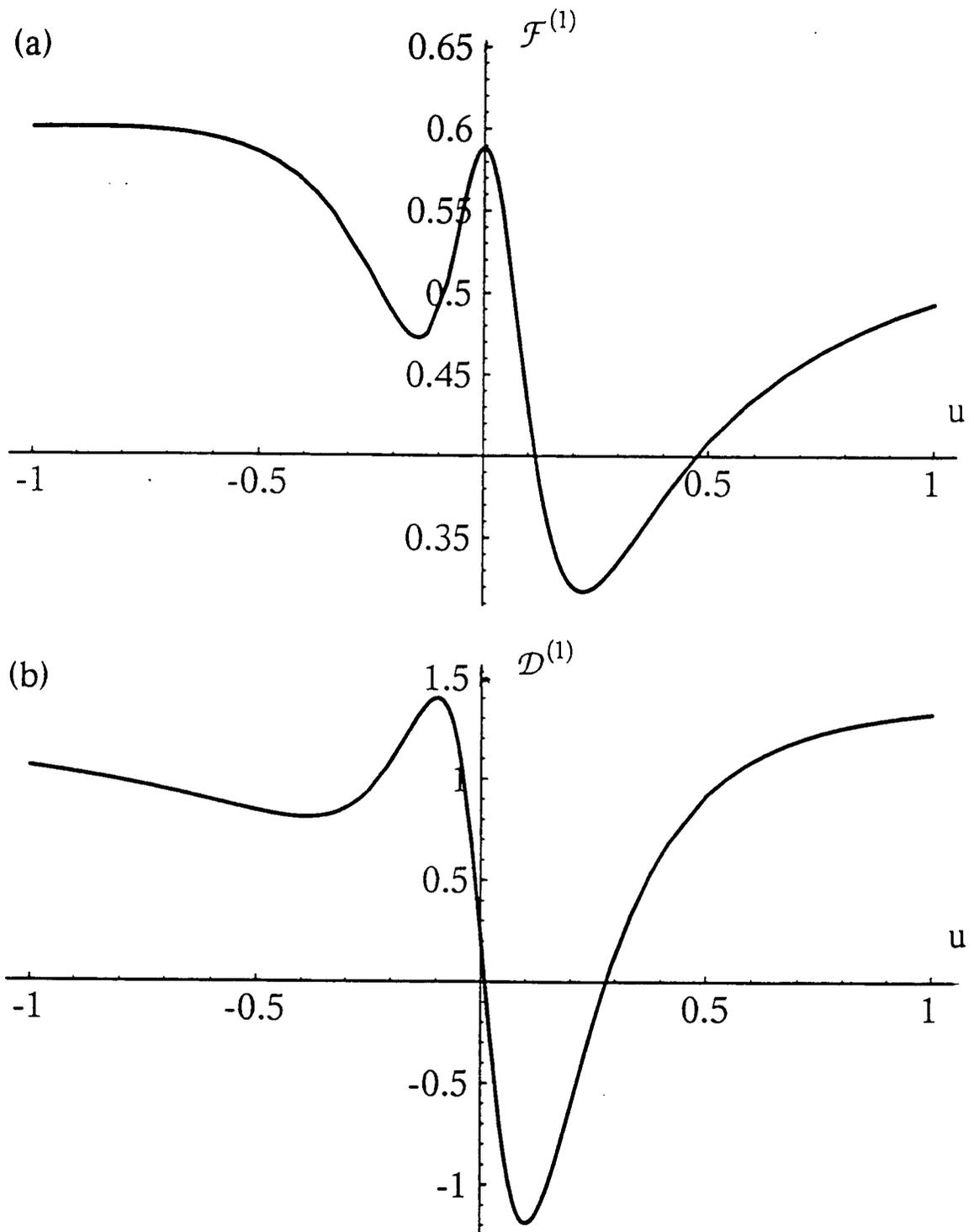


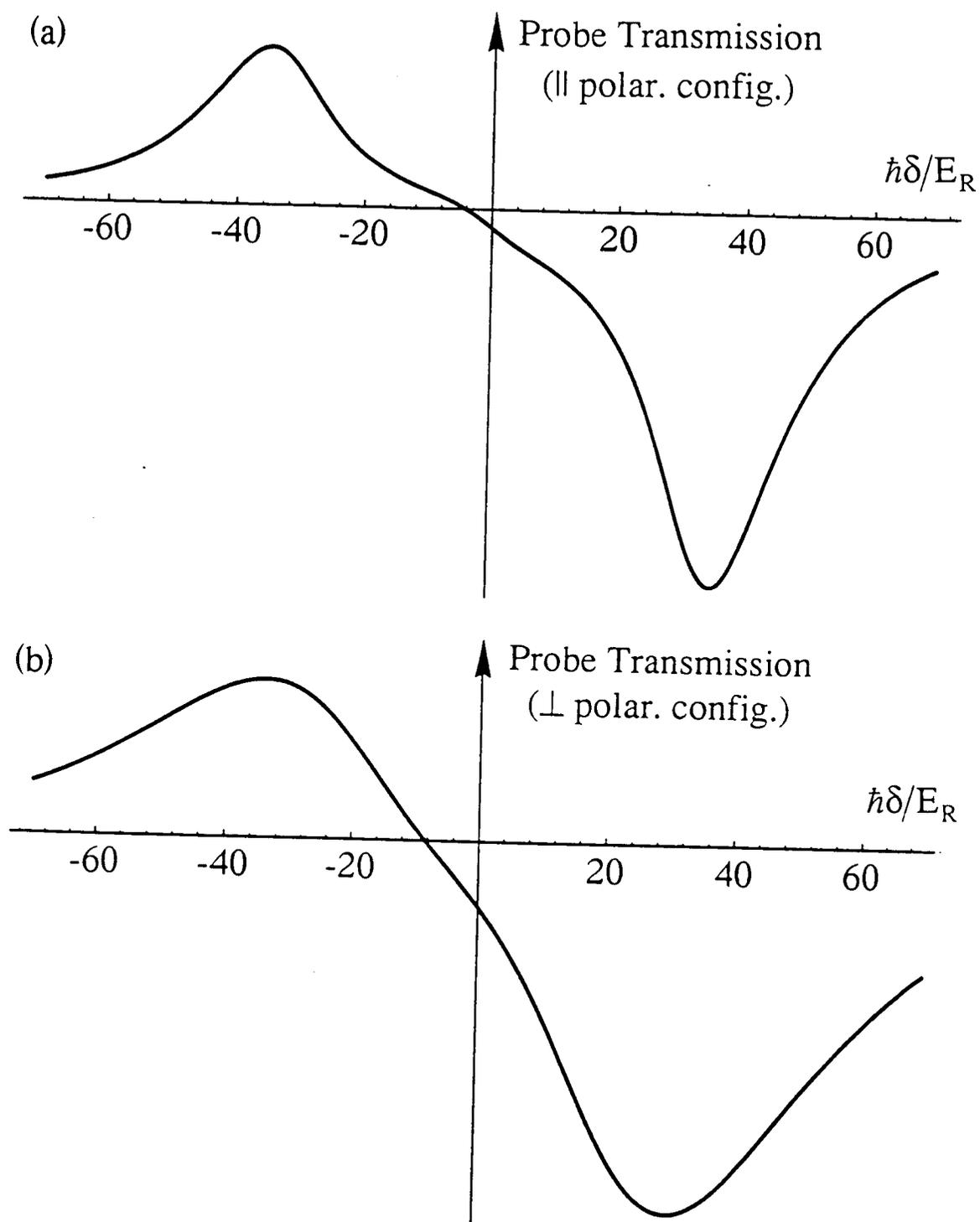


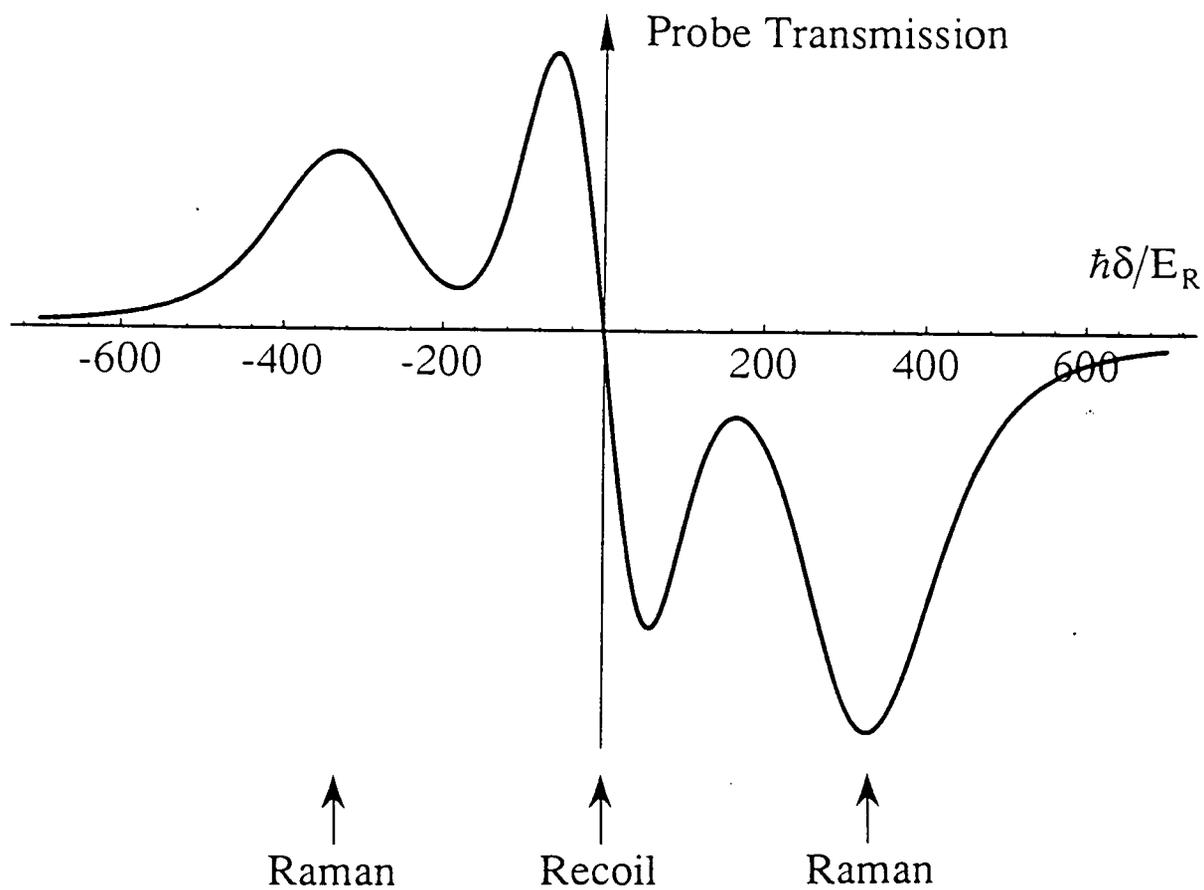




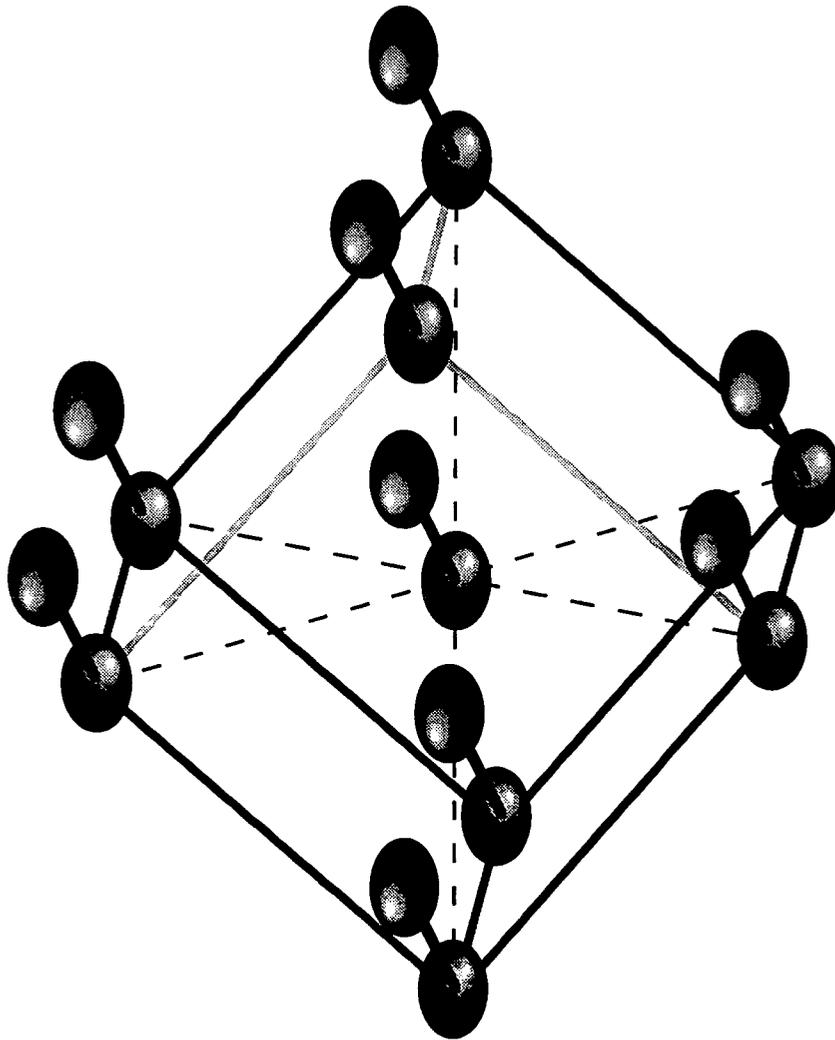








CONCLUSION GÉNÉRALE



*“Car personne ici-bas ne termine et n’achève ;
Les pires des humains sont comme les meilleurs ;
Nous nous réveillons tous au même endroit du rêve ;
Tout commence en ce monde et tout finit ailleurs.”*

Victor Hugo (1802-1885). *Les Rayons et les Ombres*. Tristesse d’Olympio.

La spectroscopie Raman et Rayleigh stimulée constitue un outil d'étude très puissant des milieux transparents. Les processus Raman stimulés se produisent entre états ayant des énergies et des populations différentes. Ils donnent essentiellement accès aux caractéristiques *statiques* du milieu (position, largeur et populations des niveaux d'énergie). L'effet Rayleigh stimulé est lié à la diffraction des ondes pompes sur certains réseaux d'observables modulés temporellement par l'onde sonde, et déphasés par rapport à l'excitation en raison du temps de réponse fini du milieu diffuseur. Il fournit des informations sur la *dynamique* du système. De plus, l'analyse des modifications du milieu induites par l'onde sonde et des processus de diffraction des ondes pompes peut permettre de caractériser certaines propriétés du milieu en l'absence de sonde. Nous avons dégagé un cadre d'étude de l'effet Rayleigh stimulé, permettant d'exploiter l'ensemble de ces informations.

Nous avons réalisé plusieurs séries d'expériences de spectroscopie Raman et Rayleigh dans différentes mélasses optiques unidimensionnelles, en enregistrant les spectres de transmission et de conjugaison de phase d'une onde sonde de faible intensité interagissant avec la mélasse. Nous avons plus particulièrement étudié les deux configurations modèles de mélasses unidimensionnelles $\text{lin}\perp\text{lin}$ et $\sigma^+-\sigma^-$, et constaté dans chacun des cas l'existence de résonances Raman et Rayleigh stimulées sur les spectres. L'interprétation physique des spectres de transmission observés dans de telles expériences a été donnée dans ce mémoire. Nous avons ainsi mis en évidence de nombreuses propriétés des mélasses optiques et apporté un support expérimental aux modèles théoriques du refroidissement sub-Doppler.

Dans le cas des mélasses optiques 1D $\text{lin}\perp\text{lin}$, l'existence de résonances Raman stimulées nous a permis de montrer la quantification du mouvement atomique dans les puits du potentiel induit par les ondes lasers, de mesurer la fréquence d'oscillation des atomes au fond de ces puits (position des résonances), et de prouver la localisation des atomes sur des distances bien inférieures à la longueur d'onde (phénomène d'affinement des raies Raman par effet Lamb-Dicke). L'étude des structures Rayleigh stimulées a également permis de mettre en évidence l'existence d'un ordre anti-ferromagnétique des atomes induit par la lumière, et d'obtenir des informations sur la dépendance des populations des niveaux de vibration des atomes en fonction de la profondeur des puits de potentiel.

Dans le cas des mélasses 1D $\sigma^+-\sigma^-$, nous avons montré que les raies Raman étaient liées à l'existence de sous-niveaux Zeeman du fondamental ayant des populations et des déplacements

lumineux différents. Nous avons prouvé que la largeur de la résonance Rayleigh stimulée était proportionnelle au coefficient de friction de la force de refroidissement. Cette propriété a été utilisée pour obtenir la première mesure expérimentale directe du coefficient de friction dans une mélasse optique, qui s'est révélée être en accord excellent avec la prédiction théorique. Nous avons également montré par le calcul que pour un choix approprié de la polarisation du faisceau sonde, une résonance Raman induite par le recul était attendue sur le spectre de transmission, et qu'elle donnait accès à la température de la mélasse. Une telle résonance n'a toutefois pas été observée à ce jour.

Un prolongement naturel du travail présenté dans ce mémoire concerne l'étude par spectroscopie Raman et Rayleigh des mélasses optiques à deux et trois dimensions d'espace. Nous avons réalisé une première série d'expériences de ce type dans des géométries lasers bi- (2D) et tridimensionnelles (3D) insensibles aux fluctuations de phase des faisceaux de refroidissement [Gry93b]. Le but de telles expériences était de mettre en évidence par spectroscopie Raman la quantification du mouvement du centre de masse atomique dans des mélasses 2D et 3D. Comme nous l'avons montré au chapitre III, une telle observation requiert que les atomes soient localisés au fond de puits de potentiel où la lumière est polarisée purement circulairement (condition nécessaire à l'affinement des raies Raman par effet Lamb-Dicke). Il est donc important dans toutes ces expériences de choisir une configuration des ondes lasers (polarisations et directions de propagation) telle que les minima des puits de potentiel correspondent à une lumière polarisée circulairement. Nous avons représenté sur la Fig. Conclu-1 le schéma de principe d'une telle expérience 3D (Fig. Conclu-1(a)) et l'allure caractéristique du spectre de transmission associé (Fig. Conclu-1(b)). On constate sur cette figure que le spectre de transmission de l'onde sonde à travers une mélasse 3D présente de très nombreuses analogies avec celui d'une mélasse 1D considéré au chapitre III. On retrouve en particulier la présence des premières raies Raman ainsi que des premières harmoniques, qui prouvent l'existence de niveaux de vibration quantifiés pour le centre de masse atomique dans les puits de potentiel induits par la lumière.

Il apparaît également au centre du spectre de la Fig. Conclu-1(b) une structure Rayleigh stimulée [Rq.C-1]. Or, nous avons vu au chapitre III que de telles structures peuvent donner des informations sur l'ordre spatial des atomes dans la mélasse. On peut donc légitimement attendre que pour un choix approprié des paramètres géométriques de l'onde sonde, on puisse mettre en

[Gry93b] G. Grynberg, B. Lounis, P. Verkerk, J.-Y. Courtois et C. Salomon, Phys. Rev. Lett. **70**, 2249 (1993).

[Rq.C-1] Contrairement au cas des mélasses optiques 1D, aucune résonance Raman induite par le recul ne contribue *a priori* à la structure centrale du spectre de transmission, le mouvement atomique étant ici confiné dans les trois directions d'espace. Notons toutefois qu'il peut subsister dans une mélasse 3D certaines directions selon lesquelles le mouvement atomique n'est pas (ou peu) confiné, et qui peuvent contribuer à une structure résonante centrale du type Raman induite par le recul.

évidence par spectroscopie Rayleigh un ordre de type ferro-magnétique ou anti-ferromagnétique dans la mélasse [Rq.C-2]. La grande latitude dans le choix de la configuration laser à trois dimensions offre à ce propos l'intérêt de pouvoir réaliser indifféremment des mélasses caractérisées par un ordre ferro- ou anti-ferromagnétique des atomes localisés au fond des puits de potentiel. Par exemple, on peut montrer que l'emploi d'une géométrie semblable à celle de la Fig. Conclu-1(a), mais où le faisceau 4 possède une ellipticité variable (Fig. Conclu-2) permet de passer continûment d'une situation ferromagnétique à une situation anti-ferromagnétique, et d'étudier ainsi la transition entre les deux régimes.

On peut également se demander s'il existe un prolongement à 2D et 3D de la configuration 1D $\sigma^+ - \sigma^-$ étudiée au chapitre IV, pour laquelle le potentiel lumineux n'est pas modulé spatialement. Nous présentons deux configurations lasers 3D présentant des analogies avec une mélasse 1D $\sigma^+ - \sigma^-$. La première, représentée sur la Fig. Conclu-3(a), correspond à l'emploi d'une géométrie tétraédrique où les faisceaux 1 et 2 (resp. 3 et 4) sont polarisés linéairement selon la direction x (resp. z). Elle conduit à une situation hybride entre une mélasse de type $\sigma^+ - \sigma^-$ et une mélasse 3D à modulation spatiale du potentiel lumineux. On peut en effet montrer qu'il existe des directions orthogonales à y le long desquelles le champ laser total a une amplitude constante et possède une polarisation linéaire tournant dans l'espace (comme dans une mélasse 1D $\sigma^+ - \sigma^-$) [Rq.C-3], tandis que les déplacements lumineux sont modulés spatialement et conduisent à une localisation tridimensionnelle des atomes. On s'attend donc dans une telle mélasse à ce que l'on observe, selon le choix de direction de propagation de l'onde sonde, un spectre semblable à celui de la Fig. Conclu-1(b) (atomes localisés), ou du type de celui étudié au chapitre IV, faisant apparaître une résonance Rayleigh stimulée de largeur proportionnelle au coefficient de friction de la force de refroidissement [Rq.C-4].

[Rq.C-2] Notons que le cas de la Fig. Conclu-1 correspond à un ordre ferromagnétique des atomes. Cette propriété est liée à la brisure de la symétrie entre les composantes σ^+ et σ^- de la lumière par la présence de l'onde 4 polarisée circulairement (voir [Gry93b]).

[Rq.C-3] Notons toutefois que cette polarisation linéaire tourne *autour* de l'axe y lorsque l'on se déplace le long d'une direction *orthogonale* à y . Il ne s'agit donc pas d'une simple généralisation de la mélasse 1D $\sigma^+ - \sigma^-$.

[Rq.C-4] Une configuration analogue, où le tétraèdre formé par les ondes pompes serait fortement allongé selon la direction y , semble intéressante expérimentalement pour l'étude de la quantification du mouvement à 1D. On peut en effet s'attendre à ce que l'existence d'une force de friction selon les directions transverses ralentisse considérablement la fuite des atomes par chauffage transverse, et allonge la durée de vie de la mélasse.

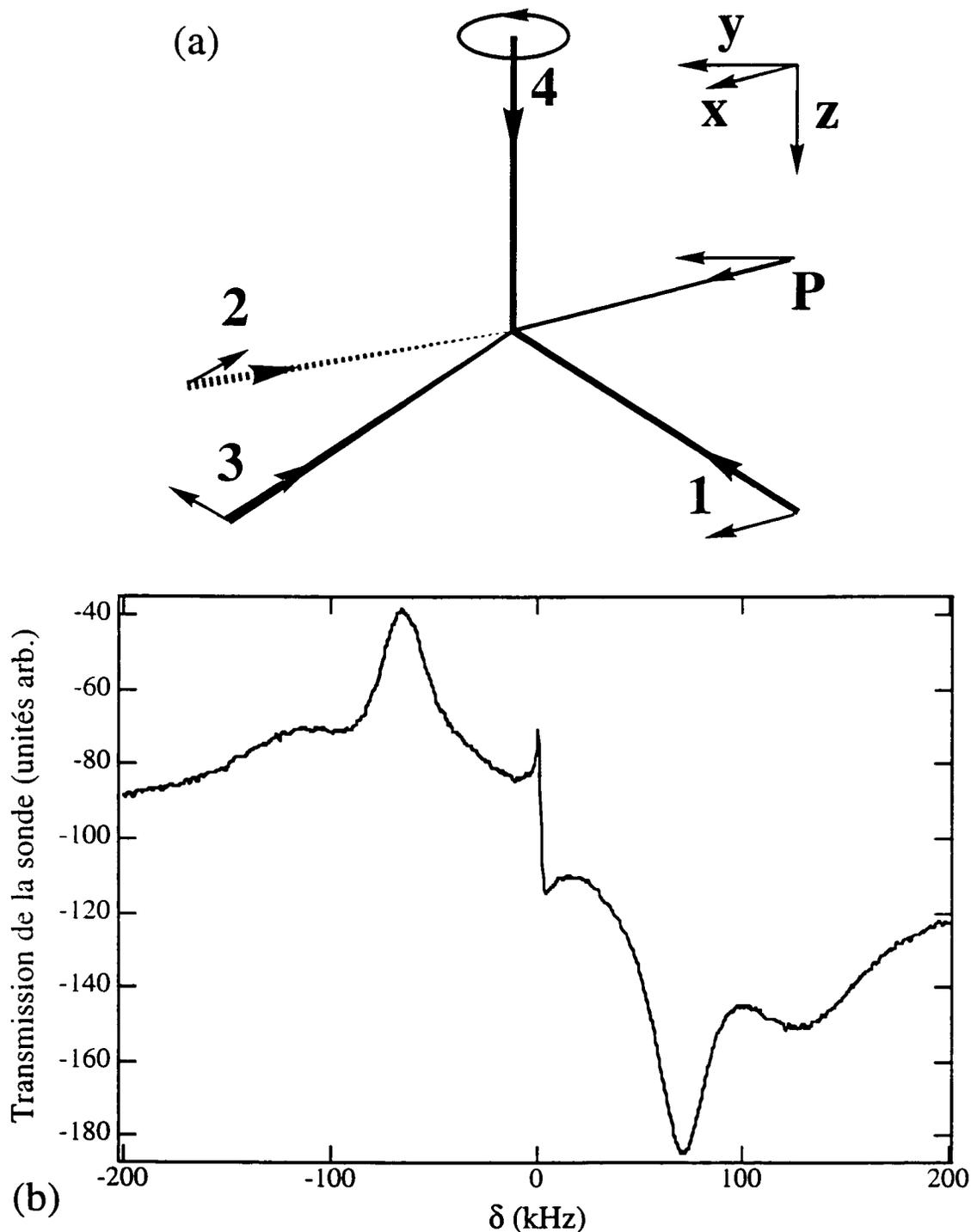


FIG. Conclu-1 : Expérience de spectroscopie pompe-sonde dans une mélasse optique 3D. (a) Schéma expérimental. Quatre ondes lasers de mêmes intensité et fréquence (ω) se propagent selon les axes d'un tétraèdre régulier. Trois faisceaux (1, 2, 3) ont une polarisation linéaire contenue dans le plan orthogonal à la direction de propagation z du faisceau 4, qui est polarisé circulairement. L'onde sonde P polarisée linéairement selon y et de fréquence ω_p se propage dans la direction x . (b) Spectre de transmission de l'onde sonde en fonction du paramètre $\delta = \omega_p - \omega$ pour un désaccord à résonance $\Delta = -12\Gamma$. On voit clairement apparaître les résonances Raman ainsi que les premières harmoniques. Une structure Rayleigh est également visible au centre du spectre.

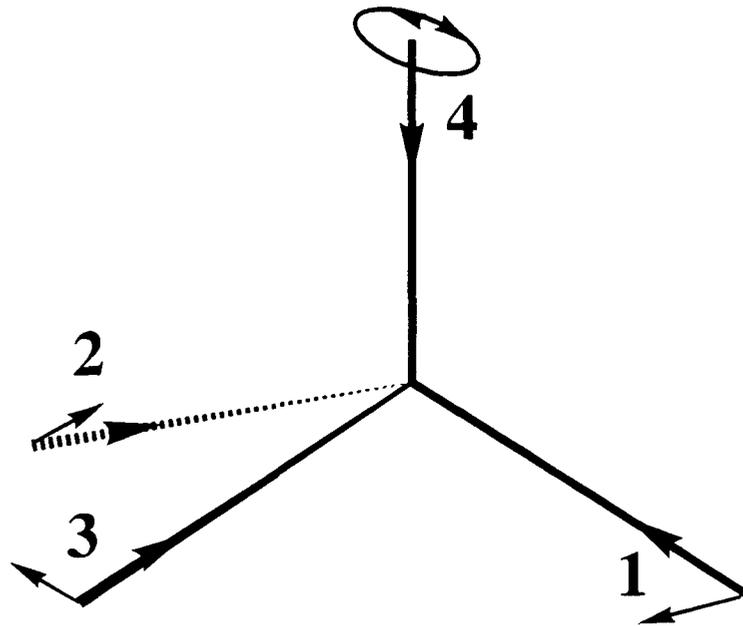


FIG. Conclu-2 : Configuration laser tétraédrique permettant de passer continûment d'un ordre ferromagnétique à un ordre anti-ferromagnétique des atomes de la mélasse. Trois faisceaux (1, 2, 3) ont une polarisation linéaire contenue dans le plan orthogonal à la direction de propagation du faisceau 4. L'ellipticité de l'onde 4 peut être ajustée de manière à réaliser une mélasse ayant une structure ferro- ou anti-ferromagnétique.

La seconde configuration, proposée par J. Dalibard et représentée sur la Fig. Conclu-3(b), correspond à un choix de quatre faisceaux de même ellipticité. On peut alors montrer qu'il existe dans la mélasse des directions selon les trois directions d'espace le long desquelles le champ laser total présente en bonne approximation une structure en hélice identique à celle d'une mélasse 1D $\sigma^+ - \sigma^-$. Une telle situation constituerait ainsi la généralisation à 3D des mélasses optiques étudiées au chapitre IV de ce mémoire.

Enfin, à plus longue échéance, notre travail pourrait servir de base à l'étude par spectroscopie Raman et Rayleigh des phénomènes liés à la statistique quantique des atomes (fermions ou bosons) susceptibles d'apparaître dans des mélasses optiques où chaque puits de potentiel serait occupé par plus d'un atome. Notons que la densité atomique des mélasses optiques que nous avons réalisées à ce jour correspond à environ 1 atome tous les 30 sites. Il faudrait donc être capable d'augmenter la densité des mélasses de deux ordres de grandeur pour que les effets de statistique quantique se manifestent sur les spectres.

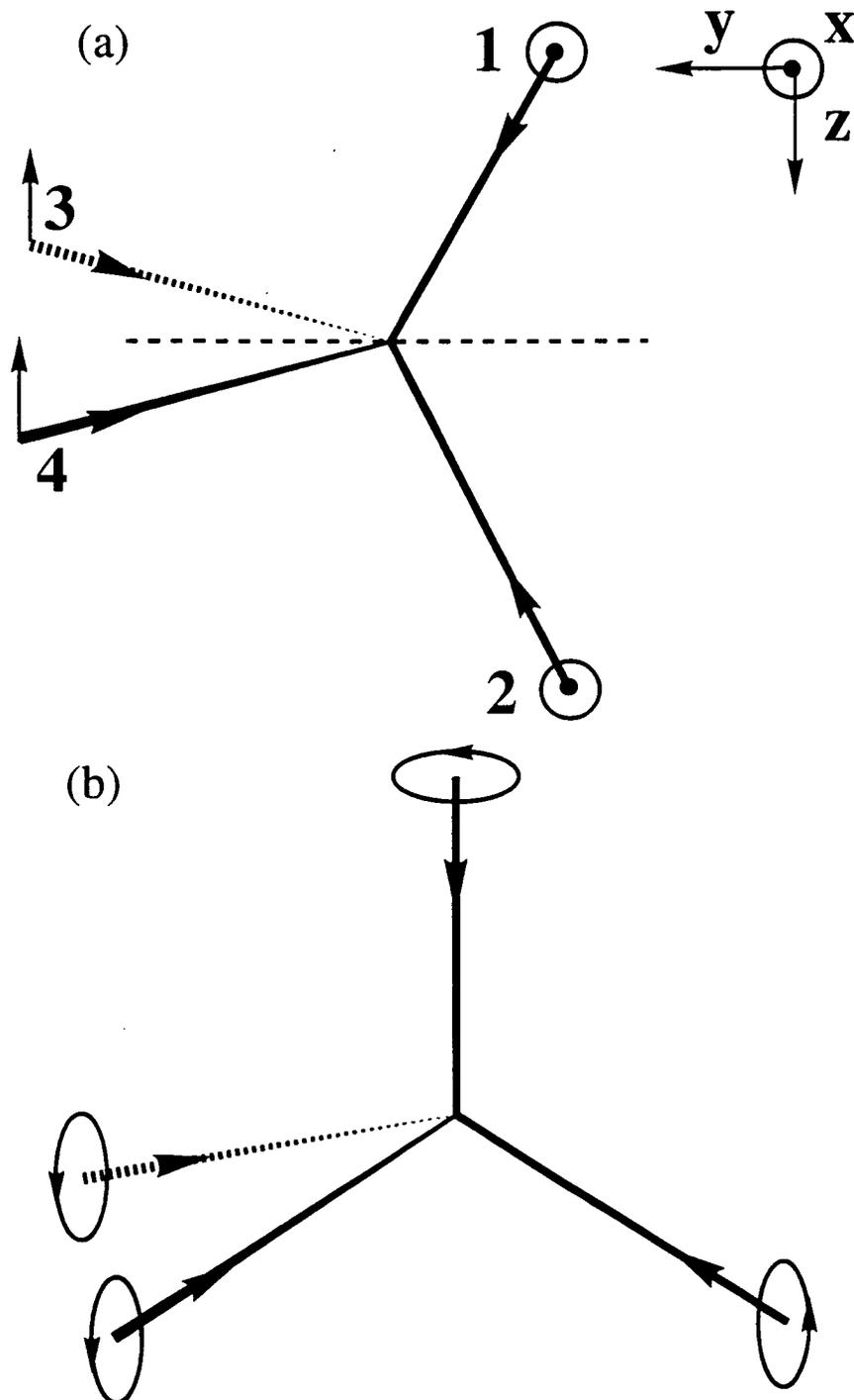
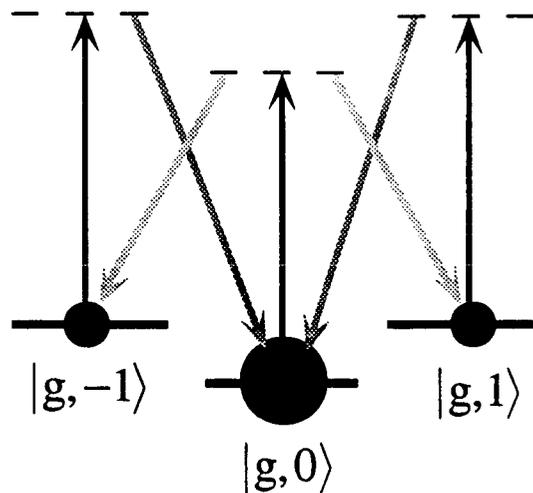


FIG. Conclu-3 : Configurations lasers tétraédriques généralisant à trois dimensions la situation des mélasses optiques 1D $\sigma^+ - \sigma^-$. (a) Les faisceaux 1 et 2 ont même polarisation linéaire selon x, orthogonale à celle des ondes 3 et 4 polarisées selon z. (b) Les quatre faisceaux ont même ellipticité. Dans les deux configurations, toutes les ondes ont mêmes intensité et fréquence.

R A P P E L S

ÉQUATION DU POMPAGE OPTIQUE SPECTROSCOPIE POMPE-SONDE



“La dernière démarche de la raison est de reconnaître qu’il y a une infinité de choses qui la surpassent.”

Blaise Pascal (1623-1662). Les Pensées.

1. Introduction

Le but de cette partie est de rappeler la forme des équations d'évolution de la matrice densité atomique totale, avec quantification des degrés de liberté externes (position et impulsion du centre de masse atomique), dans le cadre de la spectroscopie pompe-sonde. Nous considérons la situation où un ou plusieurs lasers (indiqués par j) de mêmes amplitude E_0 et fréquence ω , mais de polarisations \vec{e}_j et vecteurs d'onde \vec{k}_j différents :

$$\vec{E}_j(\vec{r}, t) = 2E_0 \vec{e}_j \cos(\omega t - \vec{k}_j \cdot \vec{r}) \quad (\text{R.1-1})$$

sont accordés au voisinage d'une transition atomique (fréquence ω_A) supposée fermée, entre un niveau fondamental $|g\rangle$ de moment cinétique J_g et un niveau excité $|e\rangle$ de moment cinétique J_e et de largeur naturelle Γ , avec des sous-niveaux Zeeman $|g, \mu\rangle$ et $|e, m\rangle$ dégénérés en l'absence de toute perturbation extérieure. Ces faisceaux lasers servent de "pompes" pour les processus de diffusion stimulée que l'on étudie au moyen d'une onde "sonde" de fréquence $\omega_p = \omega + \delta$ variable autour de ω , de polarisation \vec{e}_p et de vecteur d'onde \vec{k}_p :

$$\vec{E}_p(\vec{r}, t) = 2\varepsilon E_0 \vec{e}_p \cos(\omega_p t - \vec{k}_p \cdot \vec{r}) \quad (\text{R.1-2})$$

On se restreint aux situations pour lesquelles :

$$|\delta| \ll |\omega - \omega_A| \quad (\text{R.1-3})$$

ce qui signifie que les ondes pompes et sonde sont désaccordées d'une même quantité $\Delta = \omega - \omega_A$ par rapport à la résonance atomique. De plus, l'intensité de l'onde sonde étant très faible comparée à celle des ondes pompes, toutes les quantités considérées ici seront exprimées au *premier ordre* en le petit paramètre :

$$\varepsilon = \frac{E_p}{E_0} \ll 1 \quad (\text{R.1-4})$$

égal au rapport des amplitudes des ondes sonde et pompes.

Après avoir rappelé la forme générale de ces équations, dites équations de Bloch optiques généralisées, nous distinguerons le cas des vapeurs atomiques, puis celui des mélasses optiques, et nous montrerons qu'il est possible dans ces deux situations, moyennant certaines hypothèses

sur les paramètres des lasers pompes, de réduire ces équations de manière à ce qu'elles ne portent que sur la restriction de la matrice densité à l'état fondamental. L'équation obtenue, ou équation du pompage optique, fera alors clairement ressortir les concepts fondamentaux de *déplacements lumineux* et de *pompage optique*.

Nous indiquerons ensuite le principe de la méthode retenue pour la résolution de cette équation, qui est celui d'une méthode perturbative au premier ordre en ϵ , après expression de l'équation de pompage optique dans l'espace de Liouville des matrices densité. Nous aborderons enfin le principe du calcul des spectres de transmission et de conjugaison de phase de la sonde.

2. Équations de Bloch optiques généralisées

Nous nous plaçons ici en représentation de Schrödinger, et nous considérons le Hamiltonien dipolaire électrique V d'interaction entre le champ laser total (pompes et sonde) $\vec{E}(\vec{r}, t)$ et l'atome, dans le cadre de l'approximation de champ tournant :

$$V = -\bar{D}^+ \cdot \vec{E}^+(\vec{R}, t) - \bar{D}^- \cdot \vec{E}^-(\vec{R}, t) \quad (\text{R.2-1})$$

Dans cette expression, $\bar{D}^+ = P_e \bar{D} P_g$ (resp. $\bar{D}^- = (\bar{D}^+)^{\dagger}$) représente la partie montante (resp. descendante) de l'opérateur moment dipolaire électrique \bar{D} (P_e et P_g désignant les projecteurs sur les sous-espaces associés aux niveaux excité et fondamental), \vec{R} est l'opérateur position du centre de masse atomique, et \vec{E}^+ (resp. \vec{E}^-) correspond à la partie de fréquence positive (resp. négative) du champ électrique total en représentation complexe :

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}, t) &= \vec{E}^+(\vec{r}, t)e^{-i\omega t} + \vec{E}^-(\vec{r}, t)e^{i\omega t} \\ &= E_0 \left[\left(\vec{\xi}(\vec{r}) + \epsilon \vec{e}_p(\vec{r})e^{-i\delta t} \right) e^{-i\omega t} + \left(\vec{\xi}^*(\vec{r}) + \epsilon \vec{e}_p^*(\vec{r})e^{i\delta t} \right) e^{i\omega t} \right] \end{aligned} \quad (\text{R.2-2})$$

Il est important de noter que la quantité vectorielle complexe :

$$\vec{\xi}(\vec{r}) = \sum_j \vec{e}_j e^{i\vec{k}_j \cdot \vec{r}} \quad (\text{R.2-3})$$

qui représente la somme des polarisations des différents lasers pompes au point d'espace \vec{r} , est une quantité généralement *non normée*, proportionnelle à la polarisation locale du champ pompe total. Par contre :

$$\bar{e}_p(\vec{r}) = \bar{e}_p e^{i\vec{k}_p \cdot \vec{r}} \quad (\text{R.2-4})$$

est une quantité normée décrivant la polarisation et la dépendance spatiale de l'onde sonde.

Afin d'obtenir une expression plus suggestive de l'équation d'évolution de la matrice densité atomique totale ρ , nous introduisons les quantités :

$$\rho_{ab} = P_a \rho P_b \quad (a, b = e, g) \quad (\text{R.2-5})$$

qui permettent de décomposer la matrice densité en blocs contenant les cohérences optiques (ρ_{eg} et ρ_{ge}) d'une part, et les populations et cohérences Zeeman (ρ_{ee} et ρ_{gg}) d'autre part. Tous les champs lasers étant de fréquence ω (pompes), ou très proches de ω (sonde), il est de plus particulièrement commode de se placer dans le référentiel "tournant" à la fréquence ω , de façon à éliminer la dépendance temporelle à fréquence élevée des cohérences optiques. Ce changement de référentiel s'effectue au moyen de la transformation :

$$\rho_{eg} \rightarrow \tilde{\rho}_{eg} = \tilde{\rho}_{ge}^\dagger = \rho_{eg} e^{i\omega t} \quad (\text{R.2-6})$$

Les équations de Bloch optiques prennent alors la forme suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\rho}_{ee} = -\Gamma \rho_{ee} + \frac{1}{i\hbar} \left[\frac{\bar{P}^2}{2M}, \rho_{ee} \right] - \frac{1}{i\hbar} \left[\bar{D}^+ \cdot \bar{E}^+(\vec{R}, t) \tilde{\rho}_{ge} - \tilde{\rho}_{eg} \bar{D}^- \cdot \bar{E}^-(\vec{R}, t) \right] \quad (\text{R.2-7.a}) \\ \dot{\tilde{\rho}}_{eg} = -\left(\frac{\Gamma}{2} - i\Delta \right) \tilde{\rho}_{eg} + \frac{1}{i\hbar} \left[\frac{\bar{P}^2}{2M}, \tilde{\rho}_{eg} \right] - \frac{1}{i\hbar} \left[\bar{D}^+ \cdot \bar{E}^+(\vec{R}, t) \rho_{gg} - \rho_{ee} \bar{D}^+ \cdot \bar{E}^+(\vec{R}, t) \right] \quad (\text{R.2-7.b}) \\ \dot{\rho}_{gg} = \frac{1}{i\hbar} \left[\frac{\bar{P}^2}{2M}, \rho_{gg} \right] - \frac{1}{i\hbar} \left[\bar{D}^- \cdot \bar{E}^-(\vec{R}, t) \tilde{\rho}_{eg} - \tilde{\rho}_{ge} \bar{D}^+ \cdot \bar{E}^+(\vec{R}, t) \right] \quad (\text{R.2-7.c}) \\ \quad + \frac{3\Gamma}{8\pi} \int d^2\vec{\kappa} \sum_{\vec{e} \perp \vec{\kappa}} (\bar{d}^- \cdot \bar{e}^*) e^{-i\vec{\kappa} \cdot \vec{R}} \rho_{ee} e^{i\vec{\kappa} \cdot \vec{R}} (\bar{d}^+ \cdot \bar{e}) \end{array} \right.$$

où \bar{P} désigne l'opérateur impulsion du centre de masse atomique. Le dernier terme de (R.2-7.c) décrit l'alimentation du niveau fondamental à partir du niveau excité par émission spontanée, et s'exprime comme une intégrale portant sur la direction $\vec{\kappa}$ d'émission du photon spontané (de polarisation $\vec{e} \perp \vec{\kappa}$ et de vecteur d'onde $k\vec{\kappa}$ (avec $k=\omega/c$)). On a fait également usage sous l'intégrale de l'opérateur moment dipolaire électrique sans dimension $\bar{d}^\pm = \bar{D}^\pm/D$, où D représente l'élément de matrice réduit de l'opérateur moment dipolaire \bar{D} :

$$D = \frac{\langle J_e \| \bar{D}^+ \| J_g \rangle}{\sqrt{2J_e + 1}} \quad (\text{R.2-8})$$

Ainsi défini, l'opérateur \bar{d}^+ est tel que sa projection $d_q^+ = \bar{d}^+ \cdot \bar{e}_q$ sur la polarisation propre \bar{e}_q ($q=0$ pour la polarisation π , et $q=\pm 1$ pour la polarisation circulaire σ^\pm) a des éléments de matrice donnés par :

$$\langle e, m | d_q^+ | g, \mu \rangle = \langle J_e, m | J_g, 1, \mu, q \rangle \quad (\text{R.2-9})$$

où $\langle J_e, m | J_g, 1, \mu, q \rangle$ est le coefficient de Clebsch-Gordan reliant les niveaux $|g, \mu\rangle$ et $|e, m = \mu + q\rangle$.

3. Réduction de l'équation pilote dans le niveau fondamental

Nous montrons ici qu'il est possible, moyennant quelques hypothèses sur le milieu atomique et les paramètres des lasers pompes, d'effectuer une élimination adiabatique de l'état excité et des cohérences optiques, et d'aboutir ainsi à une équation d'évolution ne portant que sur la restriction $\sigma = \rho_{gg}$ de la matrice densité à l'état fondamental. Cette équation fait alors apparaître les phénomènes de déplacements lumineux des sous-niveaux Zeeman et de pompage optique entre ces sous-niveaux, dus à l'action des lasers. Nous distinguerons deux cas limites selon la température du milieu atomique. Nous envisagerons tout d'abord le cas des vapeurs atomiques pour lesquelles la largeur Doppler $k\bar{v}$ est très grande devant Γ et les déplacements lumineux (cette situation correspond par exemple au cas des gaz à température ambiante), puis celui des mélasses optiques sub-Doppler au voisinage de l'optimum du refroidissement, de température de l'ordre de quelques μK et de largeur Doppler $k\bar{v} \ll \Gamma$.

3.1. Cas des vapeurs atomiques

Nous étudions tout d'abord le cas des vapeurs atomiques, dans le cadre de l'approximation semi-classique où les degrés de liberté externes de l'atome ne sont pas quantifiés, et où la position du centre de masse atomique \bar{r} s'exprime en fonction de la vitesse \bar{v} de l'atome :

$$\bar{r} = \bar{r}_0 + \bar{v}t \quad (\text{R.3.1-1})$$

en supposant l'atome situé en \bar{r}_0 à l'instant $t = 0$. Cette substitution fait ainsi apparaître dans les équations de Bloch une nouvelle dépendance temporelle de fréquence $\bar{k} \cdot \bar{v}$ (où \bar{k} est ici la forme générique du vecteur d'onde des ondes lasers), qui peut en fait être réincluse dans la fréquence ω

des ondes. Ceci a alors généralement le double effet d'introduire des désaccords différents pour chaque onde laser suivant la valeur de son vecteur d'onde, levant ainsi la dégénérescence de fréquence entre les ondes pompes, et de particulariser chaque classe de vitesse atomique. Afin d'éviter ces difficultés, nous n'envisagerons ici que des situations où le désaccord des lasers pompes est très grand en valeur absolue devant la largeur Doppler du milieu :

$$|\Delta| \gg k\bar{v} \quad (\text{R.3.1-2})$$

ce qui permet, lorsque les ondes appliquées se propagent dans la même direction, de considérer les atomes comme étant tous immobiles, et uniformément répartis spatialement. Toutes les quantités physiques déduites de la matrice densité atomique, notamment la polarisation non linéaire du milieu, feront ainsi l'objet d'une moyenne sur la variable spatiale \bar{r}_0 . A l'hypothèse (R.3.1-2), suggérée par la distribution de vitesse atomique, nous en ajouterons une supplémentaire, nécessaire à l'élimination adiabatique des cohérences optiques et du niveau excité, et qui est celle de faible saturation de la transition atomique. Cette hypothèse s'exprime au moyen d'une condition portant sur le paramètre de saturation de la transition par une onde pompe :

$$s_0 = \frac{\Omega^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \ll 1 \quad (\text{R.3.1-3})$$

où :

$$\Omega = -\frac{2DE_0}{\hbar} \quad (\text{R.3.1-4})$$

est la fréquence de Rabi résonnante caractérisant le couplage entre le dipôle atomique et l'onde pompe.

La condition (R.3.1-3) se traduit par une séparation très nette des temps d'évolution des différents éléments de la matrice densité ρ . Ainsi, au bout d'un temps de l'ordre de quelques $1/\Gamma$, la relaxation conduit les variables rapides $\bar{\rho}_{eg}$ et ρ_{ee} à être asservies à l'évolution de la variable lente $\sigma = \rho_{gg}$ dont le temps caractéristique d'évolution est de l'ordre de $1/\Gamma s_0$, beaucoup plus long que $1/\Gamma$ [Rq.R-1]. Si l'on se restreint à l'évolution de la matrice densité au voisinage de son état stationnaire, il devient légitime de procéder à l'élimination adiabatique des variables rapides, qui s'expriment alors en fonction de σ . De plus, les éléments de matrice de ρ_{ee} étant de l'ordre de

[Rq.R-1] Ce résultat, parfaitement valable dans le cas où les éléments de la matrice densité sont indépendants du temps, n'est *a priori* pas évident ici à cause des termes évoluant à la fréquence δ . En fait, ces termes étant d'ordre 1 en ϵ , les équations de Bloch peuvent être découplées par un traitement perturbatif en ϵ en deux parties ne contenant pas de termes dépendant du temps, et pour lesquelles le raisonnement présenté ici demeure valide.

$s_0 \ll 1$, il est également possible de négliger dans (R.2-7.b) le coupage entre $\tilde{\rho}_{eg}$ et ρ_{ee} . Sous l'hypothèse (R.1-3), on parvient ainsi à l'expression suivante pour $\tilde{\rho}_{eg}$:

$$\tilde{\rho}_{eg} = -\frac{1}{\hbar} \frac{D}{\Delta + i\Gamma/2} (\bar{d}^+ \cdot \bar{E}^+(\bar{r}_0)) \sigma \quad (\text{R.3.1-5})$$

d'où l'on déduit en utilisant (R.2-7.a) :

$$\rho_{ee} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{D^2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} (\bar{d}^+ \cdot \bar{E}^+(\bar{r}_0)) \sigma (\bar{d}^- \cdot \bar{E}^-(\bar{r}_0)) \quad (\text{R.3.1-6})$$

En portant ces expressions dans l'Eq. (R.2-7.c), on trouve alors l'équation d'évolution de la matrice densité réduite à l'état fondamental, et qui porte le nom d'équation du pompage optique :

$$\dot{\sigma} = \frac{1}{i\hbar} [H_{\text{eff}}, \sigma] + (\dot{\sigma})_{\text{relax}} \quad (\text{R.3.1-7})$$

avec :

$$H_{\text{eff}} = \hbar \Delta' A(\bar{r}_0, t) \quad (\text{R.3.1-8})$$

$$(\dot{\sigma})_{\text{relax}} = -\frac{\Gamma'}{2} \left\{ A(\bar{r}_0, t), \sigma \right\} + \Gamma' \sum_{q=0, \pm 1} B_q^\dagger(\bar{r}_0, t) \sigma B_q(\bar{r}_0, t) \quad (\text{R.3.1-9})$$

et :

$$\Delta' = \Delta s_0 / 2 \quad (\text{R.3.1-10})$$

$$\Gamma' = \Gamma s_0 / 2 \quad (\text{R.3.1-11})$$

$$A(\bar{r}_0, t) = \left[\bar{d}^- \cdot (\bar{\xi}^*(\bar{r}_0) + \varepsilon \bar{e}_p^*(\bar{r}_0) e^{i\delta t}) \right] \left[\bar{d}^+ \cdot (\bar{\xi}(\bar{r}_0) + \varepsilon \bar{e}_p(\bar{r}_0) e^{-i\delta t}) \right] \quad (\text{R.3.1-12})$$

$$B_q(\bar{r}_0, t) = \left[\bar{d}^- \cdot (\bar{\xi}^*(\bar{r}_0) + \varepsilon \bar{e}_p^*(\bar{r}_0) e^{i\delta t}) \right] d_q^+ \quad (\text{R.3.1-13})$$

dont on ne retiendra que les termes d'ordre au plus 1 en ε .

L'équation (R.3.1-7) décrit entièrement l'effet de l'interaction de l'atome avec le champ laser. Cette interaction peut être séparée en deux parties [Bar61], correspondant à chacun des deux termes de (R.3.1-7) :

- D'une part la partie *réactive*, associée au Hamiltonien effectif H_{eff} , qui décrit les *déplacements lumineux* des sous-niveaux Zeeman du fondamental. Ces déplacements ont pour ordre de grandeur caractéristique $\hbar \Delta'$, et sont donc proportionnels à l'intensité des

champs pompes, et inversement proportionnels au désaccord à résonance. Dans le cas général, ils conduisent à une levée de dégénérescence dans l'état fondamental, et peuvent varier spatialement.

- D'autre part la partie *dissipative*, qui rend compte des processus d'absorption d'un photon laser (premier terme de (R.3.1-9) suivie de l'émission spontanée d'un photon de fluorescence (second terme de (R.3.1-9)). Ces processus sont en particulier responsables de transitions réelles entre sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental (pompage optique), qui se traduisent par des élargissements radiatifs ainsi que par des différences de population de ces sous-niveaux. Le pompage optique est caractérisé par le taux Γ' , proportionnel à l'intensité des ondes pompe et à l'inverse du carré du désaccord à résonance, et qui peut varier dans l'espace.

Il est important de noter que les déplacements lumineux, ainsi que les processus de départ des sous-niveaux Zeeman, sont tous deux décrits en termes de l'opérateur sans dimension A , ce qui montre que les sous-niveaux ayant un déplacement lumineux bien défini (états propres de A), ont également un taux de départ par pompage optique bien défini. Cette propriété fondamentale fait que la base diagonalisant A est toujours la mieux adaptée pour obtenir des images physiques claires, ainsi que pour effectuer des calculs comme celui de la résolution de l'équation du pompage optique (R.3.1-7). Notons enfin que si A décrit les processus de départ, B_q décrit les processus de retombée du pompage optique.

3.2. Cas des mélasses optiques

Nous considérons à présent le cas des mélasses optiques sub-Doppler, où le rôle des ondes pompes est tenu par les ondes lasers de refroidissement. Nous nous plaçons en outre au voisinage de l'optimum de refroidissement, ce qui requiert une faible saturation de la transition optique :

$$s_0 \ll 1 \quad (\text{R.3.2-1})$$

(condition déjà envisagée pour le cas des vapeurs atomiques), ainsi qu'un grand désaccord laser [Dal89] :

$$|\Delta| \gg \Gamma \quad (\text{R.3.2-2})$$

La seule nouveauté par rapport à la situation du §R.3.1 est la quantification des degrés de liberté externes de l'atome, qui se traduit d'une part par le remplacement de la position classique \vec{r}_0

par l'opérateur position \vec{R} , et d'autre part par la présence de commutateurs avec l'opérateur $\vec{P}^2/2M$, décrivant l'énergie cinétique du centre de masse de l'atome. Le problème est en particulier de connaître l'ordre de grandeur de ces commutateurs, comparé à celui des termes de relaxation intervenant dans l'équation d'évolution des variables rapides. Afin d'effectuer cette comparaison, il est commode d'exprimer ces commutateurs en représentation de Wigner :

$$\frac{1}{i\hbar} \left[\frac{\vec{P}^2}{2M}, \rho \right] \xrightarrow{\text{Wigner}} -\vec{v} \cdot \vec{\nabla} W \quad (\text{R.3.2-3})$$

La distribution de Wigner W variant typiquement à l'échelle de la longueur d'onde, on constate immédiatement que l'ordre de grandeur de ces commutateurs est $k\bar{v}$ (où \bar{v} est la vitesse quadratique moyenne des atomes de la mélasse). Or, au voisinage de l'optimum de refroidissement des mécanismes sub-Doppler, la vitesse quadratique moyenne des atomes est de l'ordre de $\Gamma_{S_0}/k \ll \Gamma/k$ [Dal89], ce qui rend légitime de négliger les commutateurs en $\vec{P}^2/2M$ dans les équations d'évolution des variables rapides. Cette approximation revient à effectuer un calcul à l'ordre 0 en le petit paramètre $k\bar{v}/\Gamma$, et par conséquent de négliger le refroidissement Doppler habituel. Elle ne permet donc pas de décrire correctement les situations où le refroidissement sub-Doppler devient inefficace.

Compte tenu des hypothèses et approximations faites ici, il devient possible de répéter la procédure d'élimination adiabatique suivie au §R.3.1 :

$$\tilde{\rho}_{\text{cg}} = -\frac{1}{\hbar} \frac{D}{\Delta + i\Gamma/2} (\vec{d}^+ \cdot \vec{E}^+(\vec{R})) \sigma \quad (\text{R.3.2-4})$$

$$\rho_{\text{cc}} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{D^2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} (\vec{d}^+ \cdot \vec{E}^+(\vec{R})) \sigma (\vec{d}^- \cdot \vec{E}^-(\vec{R})) \quad (\text{R.3.2-5})$$

et d'ainsi aboutir à l'équation du pompage optique généralisée suivante :

$$\dot{\sigma} = \frac{1}{i\hbar} [H_{\text{eff}}, \sigma] + (\dot{\sigma})_{\text{relax}} \quad (\text{R.3.2-6})$$

avec :

$$H_{\text{eff}} = \frac{\vec{P}^2}{2M} + \hbar \Delta' A(\vec{R}, t) \quad (\text{R.3.2-7})$$

$$(\dot{\sigma})_{\text{relax}} = -\frac{\Gamma'}{2} \{ A(\vec{R}, t), \sigma \} + \Gamma' \frac{3}{8\pi} \int d^2\vec{k} \sum_{\vec{e}, \vec{L}, \vec{K}} B_{\vec{e}}^{\dagger}(\vec{R}, t) e^{-i\vec{k}\vec{R}} \sigma e^{i\vec{k}\vec{R}} B_{\vec{e}}(\vec{R}, t) \quad (\text{R.3.2-8})$$

et :

$$A(\vec{R}, t) = \left[\vec{d}^- \cdot (\vec{\xi}^*(\vec{R}) + \varepsilon \vec{e}_p^*(\vec{R}) e^{i\delta t}) \right] \left[\vec{d}^+ \cdot (\vec{\xi}(\vec{R}) + \varepsilon \vec{e}_p(\vec{R}) e^{-i\delta t}) \right] \quad (\text{R.3.2-9})$$

$$B_{\bar{\epsilon}}(\bar{\mathbf{R}}, t) = \left[\bar{d}^- \cdot \left(\bar{\xi}^*(\bar{\mathbf{R}}) + \epsilon \bar{e}_p^*(\bar{\mathbf{R}}) e^{i\delta t} \right) \right] \left[\bar{d}^+ \cdot \bar{\epsilon} \right] \quad (\text{R.3.2-10})$$

dont on ne retiendra que les termes d'ordre au plus 1 en ϵ . Il est important de noter que la remarque faite au §R.3.1 concernant le choix de la base diagonalisant l'opérateur des déplacements lumineux comme base privilégiée où les taux de départ par pompage optique sont également bien définis, doit ici être nuancée. En effet, dans le cas des mélasses optiques où l'opérateur A dépend de l'espace, le Hamiltonien effectif H_{eff} fait intervenir simultanément l'opérateur impulsion (énergie cinétique de l'atome) et l'opérateur position (dépendance spatiale de A), qui ne commutent pas entre eux. Il s'ensuit que la base diagonalisant H_{eff} n'est plus celle qui diagonalise l'opérateur A des taux de pompage, ce qui supprime *a priori* l'existence d'une base privilégiée. En outre, une difficulté supplémentaire peut apparaître dans le cas où les déplacements lumineux sont indépendants de l'espace, puisque le spectre de H_{eff} présente alors une structure de continuum, qui rend délicate l'estimation des taux caractéristiques de relaxation du milieu. Il faut donc retenir qu'il est *impossible* de calculer l'élargissement des niveaux propres de H_{eff} par *diagonalisation* de l'opérateur A , ce qui conduirait en toute circonstance à des largeurs de l'ordre de Γ' , en contradiction avec les résultats expérimentaux (voir chapitres III et IV).

La plupart des situations considérées dans ce mémoire concernant les mélasses optiques à une seule dimension d'espace, il est intéressant de donner la forme réduite de l'Eq. (R.3.2-8) dans le cas où seuls les degrés de liberté selon l'axe Oz sont quantifiés, et où tous les lasers se propagent le long de cette direction. Il suffit pour cela d'effectuer l'intégration dans (R.3.2-8) selon les autres directions d'espace, ce qui conduit à la nouvelle expression :

$$(\dot{\sigma})_{\text{relax}} = -\frac{\Gamma'}{2} \{A(Z, t), \sigma\} + \Gamma' \int_{-\hbar k}^{\hbar k} dp \sum_{q=0, \pm 1} N_q(p) B_q^\dagger(Z, t) e^{-ipZ/\hbar} \sigma e^{ipZ/\hbar} B_q(Z, t) \quad (\text{R.3.2-11})$$

avec :

$$B_q(Z, t) = \left[\bar{d}^- \cdot \left(\bar{\xi}^*(Z) + \epsilon \bar{e}_p^*(Z) e^{i\delta t} \right) \right] d_q^+ \quad (\text{R.3.2-12})$$

$$N_{\pm 1}(p) = \frac{3}{8\hbar k} \left(1 + \frac{p^2}{\hbar^2 k^2} \right) \quad (\text{R.3.2-13.a})$$

$$N_0(p) = \frac{3}{4\hbar k} \left(1 - \frac{p^2}{\hbar^2 k^2} \right) \quad (\text{R.3.2-13.a})$$

où Z est l'opérateur position selon la direction Oz . L'intégrale porte sur l'impulsion du photon émis spontanément le long de l'axe Oz , et l'indice q représente la projection du moment angulaire du photon sur cet axe. Les fonctions N_q rendent compte de la distribution angulaire du diagramme d'émission spontanée.

4. Résolution perturbative de l'équation du pompage optique

Dans une expérience pompe-sonde, toutes les quantités étudiées s'expriment au premier ordre en le petit paramètre ϵ , de telle sorte que l'on se trouve dans une situation où la théorie de la réponse linéaire peut s'appliquer. L'effet de la sonde sur le milieu atomique se résume donc en l'*excitation* de certains modes dynamiques du système interagissant avec les seules ondes pompes, mais en aucun cas en une *modification* des caractéristiques dynamiques du milieu. Ainsi, à une configuration d'ondes pompes donnée (géométrie, intensités, désaccords) correspond un ensemble de modes dynamiques, associés de façon univoque à une résonance (de position et largeur déterminées) *susceptible* d'être observée. Mais c'est le choix particulier des caractéristiques (polarisation et direction de propagation) de la sonde qui détermine les modes dynamiques effectivement excités, et donc les résonances *réellement* observées. En faisant *varier* ces caractéristiques, il est ainsi généralement possible de mettre en évidence des propriétés dynamiques *différentes* du milieu étudié.

A la base de toute prédiction théorique concernant de telles expériences se trouve la résolution de l'équation du pompage optique précédemment rappelée pour deux cas particuliers. Nous présentons ici la méthode retenue pour la résolution de cette équation, et qui est basée dans l'esprit de la méthode de la réponse linéaire, sur une approche perturbative. Dans un premier temps, les modes dynamiques d'évolution du système atomique en présence des seules ondes pompes sont déterminés, donnant accès aux temps caractéristiques de relaxation (et donc aux largeurs des résonances), ainsi qu'aux fréquences d'oscillation du système (correspondant aux positions des résonances). Dans un second temps, l'effet de la sonde au premier ordre en ϵ est caractérisé et les modes excités identifiés, ce qui conduit directement à l'expression de la modification de la matrice densité due à la présence de la sonde.

4.1. Caractéristiques dynamiques du milieu atomique en présence des seules ondes pompes

Le premier pas de la résolution de l'équation du pompage optique consiste en l'identification des modes dynamiques d'évolution du système interagissant avec les seules ondes pompes. Cette première étape revient ainsi à considérer l'une des Eqs (R.3.1-7) ou (R.3.2-6) à l'ordre 0 en ϵ , et à l'exprimer dans l'espace de Liouville des matrices densités, où elle prend la forme :

$$\dot{\sigma} = \mathcal{L} \cdot \sigma \quad (\text{R.4.1-1})$$

Les ondes pompes ayant toutes la même fréquence ω , l'opérateur de Liouville \mathcal{L} ne possède pas de dépendance explicite en temps. On cherche alors les vecteurs propres et valeurs propres de \mathcal{L} :

$$\mathcal{L} \cdot \sigma_\lambda = -(\gamma_\lambda + i\omega_\lambda) \sigma_\lambda \quad (\text{R.4.1-2})$$

où $-\gamma_\lambda - i\omega_\lambda$ (avec $\gamma_\lambda \geq 0$ et ω_λ réel) est la valeur propre associée à la matrice densité propre σ_λ . Du fait de l'existence et de l'unicité de l'état stationnaire, on sait en particulier que l'une (et une seule) de ces valeurs propres est exactement nulle, et que son vecteur propre associé $\sigma_{\text{st}}^{(0)}$ (que l'on choisira de trace unité) correspond à l'état stationnaire du milieu en l'absence de sonde. Les autres vecteurs propres sont de trace nulle, et pour des raisons physiques évidentes, les valeurs propres associées ont une partie *réelle* négative déterminant les *largeurs* des résonances observables, leur partie *imaginaire* déterminant la *position* de ces résonances.

4.2. Calcul de la modification de la matrice densité par l'onde sonde

Nous commençons par réexprimer l'équation du pompage optique *en présence de l'onde sonde* au premier ordre en ε en faisant apparaître l'opérateur de Liouville \mathcal{L} précédemment considéré. Cette équation prend alors la forme :

$$\dot{\sigma} = \mathcal{L} \cdot \sigma - \varepsilon \left(S(\sigma) e^{-i\delta t} + S(\sigma)^\dagger e^{i\delta t} \right) \quad (\text{R.4.2-1})$$

où la fonction $S(\sigma)$, de trace nulle, ne possède pas de dépendance explicite en temps. L'approche perturbative en ε suggère alors de chercher la matrice densité stationnaire totale σ_{st} sous la forme :

$$\sigma_{\text{st}} = \sigma_{\text{st}}^{(0)} + \varepsilon \left(\sigma_{\text{st}}^{(1)} e^{-i\delta t} + \left(\sigma_{\text{st}}^{(1)} \right)^\dagger e^{i\delta t} \right) \quad (\text{R.4.2-2})$$

où $\sigma_{\text{st}}^{(1)}$ n'est *pas* hermitienne. Portant (R.4.2-2) dans (R.4.2-1), et en identifiant les termes de premier ordre en ε , on obtient immédiatement l'équation satisfaite par $\sigma_{\text{st}}^{(1)}$:

$$(i\delta + \mathcal{L}) \cdot \sigma_{\text{st}}^{(1)} = S(\sigma_{\text{st}}^{(0)}) \quad (\text{R.4.2-3})$$

qui décrit clairement le fait que $\sigma_{\text{st}}^{(1)}$ est due à la réponse dynamique du milieu en présence des seules ondes pompes (dynamique entièrement contenue dans l'opérateur de Liouville \mathcal{L}), au terme source $S(\sigma_{\text{st}}^{(0)})$ décrivant l'excitation par la sonde (dont les caractéristiques sont entièrement contenues dans S) du milieu dans son état non perturbé $\sigma_{\text{st}}^{(0)}$. L'équation (R.4.2-3) se résoud

aisément par décomposition du terme source sur la base des vecteurs propres de l'opérateur de Liouville :

$$S(\sigma_{st}^{(0)}) = \sum_{\lambda} s_{\lambda} \sigma_{\lambda} \quad (\text{R.4.2-4})$$

On obtient alors en effet de façon évidente l'expression de $\sigma_{st}^{(1)}$:

$$\sigma_{st}^{(1)} = \sum_{\lambda} \frac{s_{\lambda}}{-\gamma_{\lambda} + i(\delta - \omega_{\lambda})} \sigma_{\lambda} \quad (\text{R.4.2-5})$$

où apparaissent les interprétations de γ_{λ} et ω_{λ} comme largeur et position des résonances.

5. Spectres de transmission et de conjugaison de phase

Dans une expérience pompe-sonde, l'interaction non linéaire des atomes et des différents faisceaux lasers en présence se manifeste par la création dans le milieu d'une polarisation \bar{P} présentant plusieurs composantes de fréquence temporelle (et spatiale) et qui sert de terme source dans les équations de Maxwell pour la génération de nouveaux champs (mélange d'ondes). Les différents faisceaux pompes ayant la même fréquence ω , les seules composantes de fréquence de la polarisation \bar{P} sont au premier ordre en champ sonde : ω , $\omega + \delta = \omega_p$, et $\omega - \delta = 2\omega - \omega_p$:

$$\bar{P} = \left(\bar{P}_0^+ e^{-i\omega t} + \varepsilon \bar{P}_p^+ e^{-i\omega_p t} + \varepsilon \bar{P}_R^+ e^{-i(2\omega - \omega_p)t} \right) + \text{c.c} \quad (\text{R.5-1})$$

Dans cette expression, \bar{P}_0^+ représente la composante de la polarisation évoluant à la fréquence des ondes pompes, qui décrit l'absorption et la modification de l'indice des pompes par elles-mêmes. La composante \bar{P}_p^+ , évoluant à la fréquence de l'onde sonde, rayonne un champ susceptible d'interférer avec l'onde sonde, et donc de modifier son intensité (la composante en quadrature avec la sonde intervient dans le calcul du spectre de transmission, caractérisé par le transfert de puissance \mathcal{P} du milieu atomique pompé vers la sonde ; la composante en phase décrit quant à elle l'effet des ondes pompes sur l'indice du milieu vu par la sonde). Enfin, \bar{P}_R^+ correspond au rayonnement d'un champ de fréquence $2\omega - \omega_p$, qui peut s'interpréter de façon globale par l'absorption de deux photons dans les ondes pompe, l'émission d'un photon à la fréquence de l'onde sonde et, par conservation de l'énergie, d'un photon de fréquence $2\omega - \omega_p$. Ce rayonnement correspond au processus de conjugaison de phase, qui est généralement caractérisé

par un coefficient de réflexion \mathcal{R} égal au rapport des intensités du faisceau conjugué et du faisceau sonde incident. Notons que lorsque le champ pompe résulte de plusieurs faisceaux lasers, le milieu peut rayonner différentes ondes conjuguées de phase. Par exemple, dans la situation où le champ pompe est une onde stationnaire et où l'onde sonde se propage dans une direction proche de celle des ondes pompes, on peut observer une onde conjuguée de phase vers l'arrière dans la direction opposée à celle de l'onde sonde (Fig. R.5-1(a)), ainsi qu'une onde conjuguée de phase vers l'avant dans la direction symétrique de la sonde par rapport aux ondes pompes (Fig. R.5-1(b)).

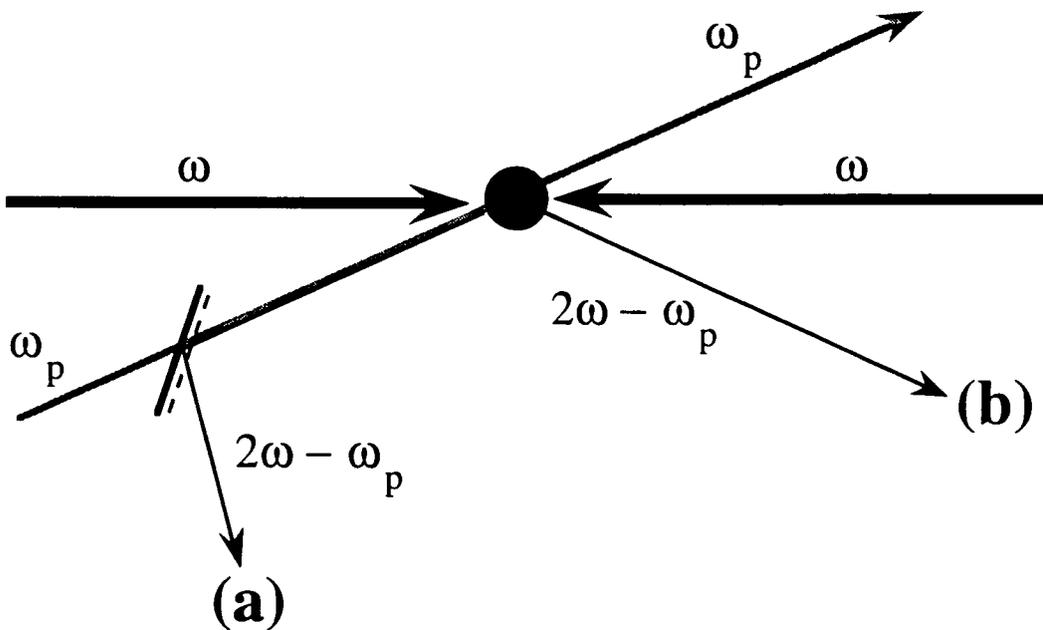


FIG. R.5-1 : Signaux de conjugaison de phase observables dans une expérience pompe-sonde utilisant comme champ pompe une onde stationnaire de fréquence ω , ainsi qu'une onde sonde de faible intensité et de fréquence $\omega_p \approx \omega$ faisant un petit angle avec les lasers pompes. Deux champs conjugués de phase, de fréquence $2\omega - \omega_p$, peuvent être rayonnés par le milieu. (a) Le signal de conjugaison de phase vers l'arrière s'observe dans la direction opposée à celle de l'onde sonde, au moyen d'une lame séparatrice placée sur le trajet de celle-ci. (b) Le signal de conjugaison de phase vers l'avant correspond à une émission dans la direction symétrique de celle de la sonde par rapport aux ondes pompes.

Il est aisé d'exprimer les différentes composantes de fréquence de la polarisation en partant de la relation de définition de \bar{P} en fonction de la matrice densité stationnaire ρ_{st} :

$$\bar{P} = N \langle \bar{D} \rangle = N \text{Tr}[\bar{D}\rho_{st}] = N D \text{Tr}[\bar{d}^+ \rho_{ge,st} + \bar{d}^- \rho_{eg,st}] \quad (\text{R.5-2})$$

où N représente la densité volumique d'atomes dans le milieu, la trace Tr portant à la fois sur les degrés de liberté internes et externes de l'atome. On déduit alors de (R.2-2), (R.2.6), (R.3.1-5) (ou (R.3.2-4)) et (R.4.2-2) :

$$\bar{P}_0^+ = \frac{ND\Omega}{2(\Delta + i\Gamma/2)} \text{Tr} \left[\bar{d}^- (\bar{d}^+ \cdot \bar{\xi}(\bar{R})) \sigma_{st}^{(0)} \right] \quad (\text{R.5-3})$$

$$\bar{P}_p^+ = \frac{ND\Omega}{2(\Delta + i\Gamma/2)} \text{Tr} \left[\bar{d}^- (\bar{d}^+ \cdot \bar{e}_p(\bar{R})) \sigma_{st}^{(0)} + \bar{d}^- (\bar{d}^+ \cdot \bar{\xi}(\bar{R})) \sigma_{st}^{(1)} \right] \quad (\text{R.5-4})$$

$$\bar{P}_R^+ = \frac{ND\Omega}{2(\Delta + i\Gamma/2)} \text{Tr} \left[\bar{d}^- (\bar{d}^+ \cdot \bar{\xi}(\bar{R})) (\sigma_{st}^{(1)})^\dagger \right] \quad (\text{R.5-5})$$

où nous avons considéré la situation la plus générale des mélasses optiques où les degrés de liberté externes sont quantifiés (il suffit de remplacer l'opérateur position \bar{R} par la position classique \bar{r}_0 pour obtenir les expressions adaptées au cas des vapeurs atomiques).

Ces expressions appellent plusieurs commentaires. On constate tout d'abord que deux termes contribuent à \bar{P}_p^+ . Le premier, analogue au terme de (R.5-3) et faisant intervenir la matrice densité stationnaire non perturbée par la sonde $\sigma_{st}^{(0)}$, représente l'absorption et la modification d'indice subies par la sonde à travers le milieu "préparé" par les ondes pompes. Le second rend compte de la diffraction des ondes pompes sur le milieu atomique modifié par la présence de la sonde (caractérisé par la matrice densité perturbée $\sigma_{st}^{(1)}$), qui donne lieu au rayonnement d'un champ ayant les caractéristiques de l'onde sonde, et pouvant donc interférer avec elle. C'est ce dernier terme, où se manifestent les caractéristiques dynamiques du milieu (seule $\sigma_{st}^{(1)}$ fait intervenir les modes d'évolution dynamiques, voir Eq. (R.4.2-5)) sous la forme de résonances sur le spectre de transmission de la sonde, qui nous intéressera par la suite. Le premier terme, qui peut être considéré comme constant sur la petite plage de fréquence balayée par la sonde sera négligé, moyennant une redéfinition de la frontière entre absorption et amplification de la sonde. Il est également intéressant de remarquer que \bar{P}_p^+ et \bar{P}_R^+ s'expriment en termes des mêmes quantités, et que le calcul des spectres de transmission et de conjugaison de phase peuvent être menés de front sans difficulté.

Nous terminons en donnant les expressions de \mathcal{P} et \mathcal{R} . Le spectre de transmission de la sonde sera toujours représenté en termes de la densité de puissance échangée \mathcal{P} entre les atomes et la sonde, normalisée à ϵ^2 :

$$\mathcal{P} = -\frac{1}{\epsilon} \bar{E}_p \cdot \frac{d\bar{P}_p}{dt} = N \hbar \omega_{s_0} \text{Im} \left\{ (\Delta - i\Gamma/2) \text{Tr} \left[\wp \sigma_{st}^{(1)} \right] \right\} \quad (\text{R.5-6})$$

avec :

$$\wp = (\bar{d}^- \cdot \bar{e}_p^*(\bar{R})) (\bar{d}^+ \cdot \bar{\xi}(\bar{R})) \quad (\text{R.5-7})$$

Dans le cas d'un milieu optiquement mince, la puissance transmise des atomes vers la sonde est donnée par le produit de la densité de puissance \mathcal{P} par le volume de la zone d'interaction entre les ondes lasers et les atomes [Rq.R-2]. L'expression de \mathcal{P} montre, comme nous l'avons déjà mentionné, que c'est la composante en *quadrature* de \bar{P}_p qui est responsable du transfert de puissance entre les atomes et le champ sonde, composante dont l'existence est liée au *temps de réponse fini* des atomes, qui ne suivent pas instantanément la modulation temporelle à la fréquence δ imposée par la sonde. On s'attend donc à ce que pour δ suffisamment petit (le milieu suit parfaitement la modulation de la sonde) ou suffisamment grand (le milieu ne perçoit plus la modulation trop rapide de la sonde) ce transfert tende vers 0, et qu'il ne prenne une valeur significative que dans le cas où δ est de l'ordre d'un temps typique de réponse (ou de manière équivalente, de relaxation) du milieu atomique.

Le coefficient de réflexion de conjugaison de phase \mathcal{R} est calculé dans la limite d'un milieu optiquement mince. On trouve sans difficulté :

$$\mathcal{R} = \left| \frac{kNL D^2}{2\hbar\epsilon_0(\Delta + i\Gamma/2)} \text{Tr} \left[\mathfrak{S} \left(\sigma_{st}^{(1)} \right)^\dagger \right] \right|^2 \quad (\text{R.5-8})$$

avec :

$$\mathfrak{S} = \left(\bar{d}^- \cdot \bar{e}_{pc}^* (\bar{\mathbf{R}}) \right) \left(\bar{d}^+ \cdot \bar{\xi} (\bar{\mathbf{R}}) \right) \quad (\text{R.5-9})$$

où $\bar{e}_{pc}(\bar{\mathbf{R}})$ représente la polarisation et la dépendance spatiale du champ conjugué de phase considéré, qui peut indifféremment correspondre au processus de conjugaison de phase vers l'arrière ou vers l'avant. Il est intéressant de noter que contrairement au cas du spectre de transmission, les *deux* composantes de quadrature de $\bar{P}_{\mathcal{R}}$ contribuent au signal de conjugaison de phase.

[Rq.R-2] La limite des milieux optiquement minces simplifie le calcul des signaux de transmission et de conjugaison de phase car ces signaux ne sont alors pas couplés entre eux à l'ordre le plus bas. Cette limite correspond tout à fait à la situation expérimentale dans les mélasse optiques unidimensionnelles où le gain de la sonde n'excède jamais quelques %, en particulier pour les grands désaccords à résonance.

Remarquons que les quantités \mathcal{P} et \mathcal{R} apparaissant comme fonctions de la valeur moyenne des opérateurs \wp et \mathfrak{S} , il sera particulièrement commode d'exprimer ces opérateurs en termes d'observables ayant une signification physique claire comme la densité atomique (donnant lieu au phénomène de diffraction de Bragg sans rotation de polarisation), la magnétisation (associée à l'effet Faraday), et l'alignement (conduisant à des effets de biréfringence), afin de mieux cerner l'origine des résonances observées sur les différents spectres. Notons enfin que l'opérateur \wp joue un rôle particulièrement important dans le calcul des spectres puisque c'est également lui, ou plus précisément son conjugué hermitique, qui intervient dans le terme source de l'équation du pompage optique, et qui détermine donc toutes les caractéristiques de la modification du milieu par l'onde sonde (notamment celles de symétrie).

L I S T E D E S R É F É R E N C E S C I T É E S



"Verba volant, scripta manent."

Proverbe latin.

Le numéro situé sous les références en **gras**
est celui de l'annexe où se trouve l'article correspondant

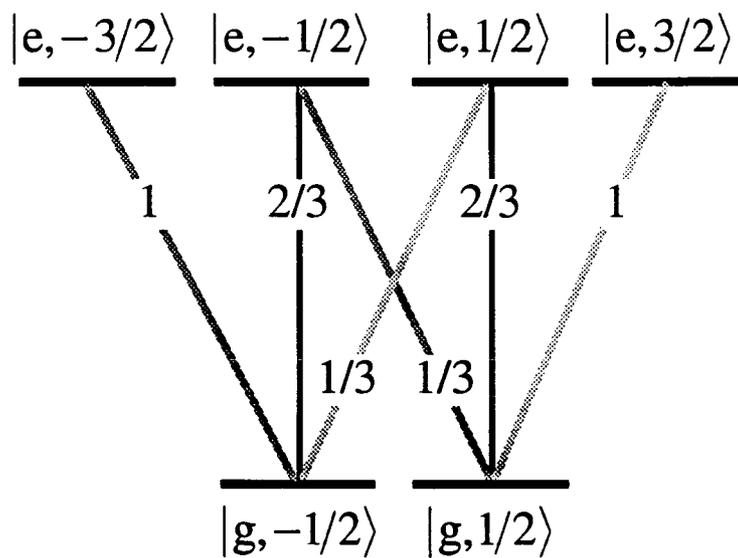
- [Ash76] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin, in *Solid State Physics* (HRW International Editions, New York, 1976) ; W.-K. Tung, in *Group Theory in Physics* (World Scientific, Singapore, 1985).
- [Bar61] J.-P. Barrat et C. Cohen-Tannoudji, *J. Phys. (Paris)* **22**, 329 (1961).
- [Bat69] I. P. Batra et R. H. Enns, *Phys. Rev.* **185**, 396 (1969).
- [Ber92] K. Berg-Sørensen, E. Bonderup, K. Mølmer et Y. Castin, *J. Phys. B* **25**, 4195 (1992).
- [Ber93] K. Berg-Sørensen, Y. Castin, K. Mølmer et J. Dalibard, soumis à *Europhys. Lett.*
- [Blo66] N. Bloembergen et P. Lallemand, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 81 (1966).
- [Blo67] N. Bloembergen, *Am. J. Phys.* **35**, 989 (1967).
- [Bog81] A. R. Bogdan, M. C. Downer et N. Bloembergen, *Opt. Lett.* **6**, 348 (1981).
- [Boy92] R. W. Boyd, in *Nonlinear Optics*, Academic Press (1992).
- [Cas90] Y. Castin et K. Mølmer, *J. Phys. B* **23**, 4101 (1990).
- [Cas91a] Y. Castin et J. Dalibard, *Europhys. Lett.* **14**, 761 (1991).
- [Cas91b] Y. Castin, J. Dalibard et C. Cohen-Tannoudji, in *Light Induced Kinetic Effects on Atoms, Ions and Molecules*, édité sous la direction scientifique de L. Moi, S. Gozzini, C. Gabbanini, E. Arimondo, et F. Strumia (ETS Editrice, Pise, 1991), p. 363.
- [Cas92] Y. Castin, thèse de doctorat, Université Paris VI, Paris (1992).
- [Che84] D. S. Chemla, D. A. B. Miller, P. W. Smith, A. C. Gossard, et W. Wiegmann, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE20**, 265 (1984) ; voir également C. Weisbuch et B. Vinter, *Quantum Semiconductor Devices : Physics and Applications* (Academic, New York, 1991).
- [Chi66] R. Y. Chiao, P. L. Kelley, et E. Garmire, *Phys. Rev. Lett* **17**, 1158 (1966).

- [Cho67] C. W. Cho, N. D. Foltz, D. H. Rank, et T. A. Wiggins, *Phys. Rev. Lett.* **18**, 107 (1967).
- [Chu85] S. Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, A. Cable et A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 48 (1985) ; P. Lett, R. Watts, C. Westbrook, W. D. Phillips, P. Gould et H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 169 (1988) ; C. Salomon, J. Dalibard, W. Phillips, A. Clairon et S. Guellati, *Europhys. Lett.* **12**, 683 (1990).
- [Coh62] C. Cohen-Tannoudji, *Ann. Phys.* **7**, 423 (1962).
- [Coh66] C. Cohen-Tannoudji et A. Kastler, in *Progress in Optics*, Vol. 5, édité sous la direction scientifique de E. Wolf, North-Holland, Amsterdam (1966).
- [Coh72] C. Cohen-Tannoudji et J. Dupont-Roc, *Phys. Rev. A* **5**, 968 (1972).
- [Coh88] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, InterEdition/Edition du CNRS (1988).
- [Coh92] C. Cohen-Tannoudji, in *Fundamental Systems in Quantum Optics*, Les Houches, session LIII, édité sous la direction scientifique de J. Dalibard, J.-M. Raimond et J. Zinn-Justin (Elsevier Science Publisher B. V., 1992), p. 1.
- [Cou92] J.-Y. Courtois et G. Grynberg, *Phys. Rev. A* **46**, 7060 (1992).
- E.III**
- [Cou93] J.-Y. Courtois et G. Grynberg, *Phys. Rev. A*, accepté pour publication.
- B.IV**
- [Cum66] H. Z. Cummins et R. W. Gammon, *J. Chem. Phys.* **44**, 2785 (1966).
- [Dal89] J. Dalibard et C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2023 (1989).
- [Deb29] P. Debye, in *Polar Molecules*, Dover Publications Inc., New York (1929).
- [Eck63] G. Eckhardt, R. Hellwarth, F. McClung, S. Schwarz, D. Weiner et E. Woodbury, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 455 (1962).
- [Göp31] M. Göppert-Mayer, *Ann. Phys. (Germany)* **9**, 273 (1931).
- [Gri91] D. Grison, B. Lounis, C. Salomon, J.-Y. Courtois et G. Grynberg, *Europhys. Lett.* **15**, 149 (1991).

- [Gry89] G. Grynberg et P. R. Berman, *Phys. Rev. A* **39**, 4016 (1989).
- [Gry90] G. Grynberg, M. Vallet, et M. Pinard, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 701 (1990).
- [Gry93a] G. Grynberg et C. Cohen-Tannoudji, *Opt. Comm.* **96**, 150 (1993).
- [Gry93b] G. Grynberg, B. Lounis, P. Verkerk, J.-Y. Courtois et C. Salomon, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2249 (1993).
- [Guo92] J. Guo, P. R. Berman, B. Dubetsky, et G. Grynberg, *Phys. Rev. A* **46**, 1426 (1992).
- [Hel63] R. Hellwarth, *Phys. Rev.* **130**, 1850 (1963).
- [Jay88] A. Jayaraman et A. K. Ramdas, *Phys. Today* **41**, 56 (1988).
- [Jes92] P. S. Jessen, C. Gerz, P. D. Lett, W. D. Phillips, S. L. Rolston, R. J. C. Spreeuw, et C. I. Westbrook, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 49 (1992).
- [Kai72] W. Kaiser et M. Maier, in *Laser Handbook*, édité sous la direction scientifique de F. T. Arecchi et E. O. Schultz-Dubois, North-Holland (1972).
- [Kle27] O. Klein, *Z. Phys.* **41**, 407 (1927).
- [Kra25] H. A. Kramers et W. Heisenberg, *Z. Phys.* **31**, 681 (1925).
- [Lan28] G. Landsberg et L. I. Mandel'stamm, *Naturwissenschaften* **16**, 557 (1928).
- [Lou92] B. Lounis, J.-Y. Courtois, P. Verkerk, C. Salomon et G. Grynberg, *Phys. Rev. Lett.* **A.IV 68**, 3029 (1992).
- [Lou93a] B. Lounis, P. Verkerk, J.-Y. Courtois, C. Salomon et G. Grynberg, *Europhys. Lett.* **D.III 21**, 13 (1993).
- [Lou93b] B. Lounis, P. Verkerk, C. Salomon, J.-Y. Courtois et G. Grynberg, *Nonlinear Opt.*, accepté pour publication.
- [Lou93c] B. Lounis, thèse de doctorat, Université Paris XI, Paris (1993).
- [LRa71] Lord Rayleigh, *Phil. Mag.* **XLI**, 274, 447 (1871) ; **XLVII** 375 (1899).

- [Mas65] D. I. Mash, V. V. Morozov, V. S. Starunov, et I. L. Fabelinskii, *JETP Lett.* **2**, 25 (1965).
- [Mol72] B. R. Mollow, *Phys. Rev. A* **5**, 2217 (1972).
- [Omo77] A. Omont, *Progress in Quantum Electronics* **5**, 69 (1977).
- [Pla34] G. Placzek, *The Rayleigh and Raman scattering*, in *Handbuch der Radiologie*, Band VI, édité sous la direction scientifique de E. Marx (Akademische, Leipzig) [UCRL translation number 256 (USAE report)] (1934).
- [Raa87] E. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu et D. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2631 (1987) ; T. Walker, D. Sesko et C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 408 (1990)
- [Ram28] C. W. Raman et K. S. Krishnan, *Nature* **121**, 501 (1928).
- [Ray90] M. G. Raymer et I. A. Walmsley, in *Progress in Optics*, Vol. 28, édité sous la direction scientifique de E. Wolf, North-Holland, Amsterdam (1990).
- [Sme23] A. Smekal, *Naturwissenschaften* **11**, 873 (1923).
- [Tab91] J. W. R. Tabosa, G. Chen, Z. Hu, R. B. Lee et H. J. Kimble, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3245 (1991).
- [Ung89] P. J. Ungar, D. S. Weiss, E. Riis et S. Chu, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2058 (1989).
- [Val92] M. Vallet, M. Pinard, et G. Grynberg, *Opt. Comm.* **87**, 340 (1992).
- [Ver92] P. Verkerk, B. Lounis, C. Salomon, C. Cohen-Tannoudji, J.-Y. Courtois et G. Grynberg, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3861 (1992).
- [Whi82] J. D. White, M. Cronin-Golomb, B. Fisher et A. Yariv, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 450 (1982) ; H. Rajhenbach et J.-P. Huignard, *Opt. Lett.* **10**, 137 (1985).
- [Win79] D. Wineland et W. Itano, *Phys. Rev. A* **20**, 1521 (1979).
- [Woo62] E. J. Woodbury et W. K. Ng, *Proc. IRE* **50**, 2347 (1962).
- [Wu77] F. Y. Wu, S. Ezekiel, M. Ducloy et B. R. Mollow, *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1077 (1977).

**INDEX DES NOTATIONS
COEFF. DE CLEBSCH-GORDAN**



“Le fait scientifique ne sera jamais que le fait brut traduit dans un langage commode.”

Henri Poincaré (1854-1912).

1. Index des notations

1.1. Constantes fondamentales

c	Vitesse de la lumière dans le vide
ϵ_0	Permittivité du vide
h $\hbar = h/2\pi$	Constante de Planck
k_B	Constante de Boltzmann

1.2. Grandeurs relatives aux champs lasers

$\omega, \vec{k}, \vec{e}_0, E_0, I_0$	Pulsation, vecteur d'onde, polarisation, amplitude et intensité des ondes intenses (ondes pompes, ou de refroidissement)
$\vec{\xi}(\vec{r})$	Somme des polarisations des champs pompes, avec dépendance spatiale des champs. Ce n'est généralement pas un vecteur normé
$\omega_p, \vec{k}_p, \vec{e}_p, E_p, I_p$	Pulsation, vecteur d'onde, polarisation, amplitude et intensité sonde
$\delta = \omega_p - \omega$	Différence de fréquence entre les pompes et la sonde ($ \delta \ll \omega$)
$\epsilon = \frac{E_p}{E_0}$	Infiniment petit égal au rapport des amplitudes sonde et pompe Les calculs sont <i>toujours</i> effectués au premier ordre en ϵ
\vec{e}_q $\vec{e}_{\pm 1} = \mp(\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y)/\sqrt{2}$ $\vec{e}_{q=0} = \vec{e}_z$	Vecteurs polarisations du champ $q = \pm 1$ pour la polarisation circulaire σ^\pm $q = 0$ pour la polarisation π

1.3. Grandeurs relatives au milieu atomique

N	Densité volumique d'atomes
M	Masse atomique
v, \bar{v}	Vitesse, vitesse quadratique moyenne des atomes
T	Température du milieu
g, e	Indices relatifs au niveau fondamental, excité
J_g, J_e	Moment cinétique. Pour tous les cas envisagés : $J_e = J_g + 1$
$ g, \mu\rangle, e, m\rangle$	Sous-niveaux Zeeman, dégénérés en l'absence des lasers
P_g, P_e	Projecteur sur le sous-espace formé par les sous-niveaux Zeeman
ω_A	Fréquence de la transition atomique
Γ	Largeur naturelle du niveau excité
$\bar{r}, \bar{p} / z, p$	Position et impulsion du centre de masse
$\bar{R}, \bar{P} / Z, P$	Opérateurs position et impulsion du centre de masse
I	Opérateur identité
J_x, J_y, J_z $J_{\pm} = J_x \pm iJ_y$	Opérateurs moment cinétique atomique
\bar{D}	Opérateur dipôle électrique
$\bar{D}^+ = P_e \bar{D} P_g$ $\bar{D}^- = P_g \bar{D} P_e$	Parties montante et descendante de l'opérateur dipôle électrique

$D = \frac{\langle J_e \ \bar{D}^+ \ J_g \rangle}{\sqrt{2J_e + 1}}$	Élément de matrice réduit de l'opérateur dipôle
$\bar{d}^+ = (\bar{d}^-)^\dagger = \bar{D}^+ / D$	Opérateur dipôle sans dimension
$d_q^\pm = \bar{d}^\pm \cdot \bar{e}_q$	Les éléments de matrice de d_q^\pm sont des coefficients de Clebsch-Gordan
\bar{P}	Polarisation du milieu
ρ $\sigma = P_g \rho P_g$ $\bar{\rho}_{eg} = P_e \rho P_g e^{i\omega t}$	Matrice densité totale du système atomique Restriction de la matrice densité à l'état fondamental Cohérences optiques dans le référentiel tournant à la fréquence ω
π	Populations

1.4. Grandeurs relatives à l'interaction atome-rayonnement

$\Delta = \omega - \omega_A$	Désaccord à résonance des lasers. Il sera souvent négatif (lasers accordés du côté rouge de la résonance atomique)
$\Omega = -\frac{2DE_0}{\hbar}$	Fréquence de Rabi résonnante pour une seule onde pompe
$s_0 = \frac{\Omega^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4}$	Paramètre de saturation de la transition atomique par une seule onde pompe
$\Gamma' = \Gamma s_0 / 2$	Taux de diffusion de la lumière par onde pompe
$\hbar\Delta' = \hbar\Delta s_0 / 2$	Déplacement lumineux ou light-shift par onde pompe
A	Opérateur égal à $\left[\bar{d}^- \cdot (\bar{\xi}^* + \varepsilon \bar{e}_p^* e^{i\delta t}) \right] \left[\bar{d}^+ \cdot (\bar{\xi} + \varepsilon \bar{e}_p e^{-i\delta t}) \right]$ (dont on ne considère que les termes d'ordre ≤ 1 en ε) décrivant le pompage optique et les déplacements lumineux

H_{eff}	Hamiltonien effectif décrivant la partie réactive du couplage atome-champs
B_q ($q = 0, \pm 1$)	Opérateur égal à $\left[\bar{d}^- \cdot (\bar{\xi}^* + \varepsilon \bar{e}_p^* e^{i\delta t}) \right] d_q^+$ et décrivant les cycles absorption-émission spontanée d'un photon de polarisation \bar{e}_q
N_q ($q = 0, \pm 1$)	Distribution d'impulsion réduite à une dimension des photons d'émission spontanée de polarisation \bar{e}_q
\mathcal{L}	Opérateur de Liouville agissant dans l'espace des matrices densité, et décrivant les propriétés dynamiques de l'atome couplé aux champs
$\aleph^{(0)}$	Valeur de la quantité \aleph en présence des pompes seules.
$\aleph^{(1)}$	Correction de la quantité \aleph due à la présence de la sonde. \aleph prend alors la valeur totale : $\aleph = \aleph^{(0)} + \varepsilon \left(\aleph^{(1)} e^{-i\delta t} + \left(\aleph^{(1)} \right)^\dagger e^{i\delta t} \right)$
\mathcal{P}	Densité de puissance transférée entre le milieu atomique et la sonde
\wp	Opérateur décrivant les observables impliquées dans \mathcal{P}
\mathcal{R}	Coefficient de réflexion de conjugaison de phase
\mathfrak{S}	Opérateur décrivant les observables impliquées dans \mathcal{R}

1.5. Grandeurs relatives aux mélasses optiques 1D

a. Généralités

$\Gamma' = \Gamma s_0$	Taux de diffusion de la lumière en présence des deux ondes pompes
$\hbar\Delta' = \hbar\Delta s_0$	Déplacement lumineux ou light-shift induit par les deux ondes pompes
$E_R = \frac{\hbar^2 k^2}{2M}$	Energie de recul
\parallel, \perp	Notation se référant aux configurations de polarisation de l'onde sonde, selon que sa polarisation est parallèle (\parallel) ou orthogonale (\perp) à celle du faisceau pompe se propageant dans la même direction qu'elle.

b. Grandeurs spécifiques aux mélasses 1D lin \perp lin

(i) Généralités

T	Transformation unitaire définie par : $T z\rangle \otimes g, \mu\rangle = z + \lambda/4\rangle \otimes g, -\mu\rangle$, et laissant invariante la mélasse
I	Transformation unitaire définie par : $I z\rangle \otimes g, \mu\rangle = -z\rangle \otimes e^{-i\mu\pi/2} g, \mu\rangle$ et laissant invariante la mélasse
Ω_v	Fréquence d'oscillation des atomes au fond des puits de potentiel

(ii) Cas d'une transition atomique $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$

$ g, \pm\rangle$	Sous-niveaux Zeeman $ g, \mu = \pm 1/2\rangle$ de l'état fondamental (axe de quantification dans la direction Oz des ondes pompes)
U_{\pm}	Potentiels lumineux associé aux sous-niveaux Zeeman $ g, \pm\rangle$
$U_0 = \frac{2}{3} \hbar \Delta s_0$	Profondeur des puits de potentiel
$ n, q, \mu\rangle$	État de Bloch d'indice de bande n, d'indice de Bloch q, et correspondant au sous-niveau Zeeman $ g, \mu\rangle$
$\pi_{n, q, \mu}$	Population du niveau $ n, q, \mu\rangle$
ρ_{\pm} ρ_{tot}	Densité atomique associée au sous-niveau Zeeman $ g, \pm\rangle$ Densité atomique totale $\rho_{\text{tot}} = \rho_+ + \rho_-$
M_{tot}	Densité d'orientation totale de la mélasse $M_{\text{tot}} = \hbar (\rho_+ - \rho_-) / 2$
$\Gamma_n^{\rightarrow+}$	Taux de transition de l'état de vibration $ n, q, -\rangle$ vers le puits U_+
$\Gamma_{n \rightarrow m}^{\rightarrow-}$	Taux de transition de l'état de vibration $ n, q, -\rangle$ vers l'état $ m, q', -\rangle$
Γ_n^{eff}	Taux de relaxation effectif de la population du niveau de vibration d'indice n
Γ_{nm}^{eff}	Taux de relaxation effectif de la cohérence entre niveaux de vibration d'indices n et m
Π	Vecteur contenant l'ensemble des populations des niveaux vibrationnels
Π_{\pm}	Vecteur contenant l'ensemble des populations des niveaux vibrationnels associés au sous-niveau Zeeman $ g, \pm\rangle$
γ_{eff}	Taux de relaxation effectif des modifications du milieu par l'onde sonde

(iii) Cas d'une transition atomique $J_g \rightarrow J_e = J_g + 1$ de moment cinétique entier

M	Indice associé au potentiel lumineux lié au sous-niveau Zeeman $ g, M\rangle$ aux points où le champ laser est polarisé σ^+
v_M	Potentiel lumineux d'indice M
$ M, n, q\rangle$	État de vibration de l'atome dans le potentiel v_M , d'indice de bande n , et d'indice de Bloch q
$\pi_{M,n,q}$	Population du niveau de vibration $ M, n, q\rangle$
$V_0 = \hbar \Delta s_0$	Paramètre décrivant la profondeur des puits de potentiel

c. Grandeurs spécifiques aux mélasses 1D $\sigma^+ - \sigma^-$

$\mathcal{V} = e^{ikZJ_z/\hbar}$	Transformation unitaire décrivant le passage dans le référentiel tournant. Dans le cadre d'une description semi-classique des atomes, l'opérateur position Z est remplacé par la position classique z
$\tilde{\mathfrak{N}}$	Expression de la quantité \mathfrak{N} dans le référentiel tournant
\tilde{p}	Impulsion atomique dans le référentiel tournant, reliée à l'impulsion p dans le référentiel du laboratoire par la relation $\tilde{p} = p + kJ_z$
$\tilde{W}_0(\tilde{p})$	Matrice densité décrivant l'état interne d'un atome d'impulsion \tilde{p} bien définie
$\tilde{\pi}(\tilde{p})$	Distribution d'impulsion atomique
$\tilde{C}(\tilde{p})$	Cohérence entre états externes $ \tilde{p} + \hbar k\rangle$ et $ \tilde{p} - \hbar k\rangle$

$ \psi_A\rangle, \psi_S\rangle$	États propres des déplacements lumineux d'un atome au repos, définis par $ \psi_A\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(g,1\rangle - g,-1\rangle)$ et $ \psi_S\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(g,1\rangle + g,-1\rangle)$
$ \tilde{\psi}_A\rangle, \tilde{\psi}_S\rangle$	États propres des déplacements lumineux d'un atome d'impulsion \tilde{p} , définis par $ \tilde{\psi}_A\rangle = \psi_A\rangle + \frac{6k\tilde{p}/M}{\Delta'} \psi_S\rangle$ et $ \tilde{\psi}_S\rangle = \psi_S\rangle - \frac{6k\tilde{p}/M}{\Delta'} \psi_A\rangle$
$F = \hbar k \Gamma s_0 \mathcal{F}$	Force de refroidissement
α	Coefficient de friction de la force de refroidissement
$D = \hbar k \Gamma s_0 \mathcal{D}$	Coefficient de diffusion en impulsion
$D_z = k_B T / \alpha$	Coefficient de diffusion spatiale
$U_0 = \hbar \Delta' / 2 E_R$	Paramètre sans dimension décrivant l'importance des déplacements lumineux
$u = kv / \Delta' $	Paramètre sans dimension proportionnel à la vitesse atomique
$\Omega_B = \frac{5}{12} \Delta' $	Fréquence de Larmor associée au champ magnétique fictif décrivant l'effet de l'onde sonde sur l'état atomique interne
f_p	Modification de la force de ralentissement liée à la pression de radiation exercée par l'onde sonde sur les atomes
f_B	Modification de la force de ralentissement liée à la création d'une orientation dans l'état fondamental par l'onde sonde
$\langle v \rangle$	Valeur moyenne de la vitesse atomique dans la mélasse (nulle en l'absence de sonde)
$\varpi = 1/2 M k_B T$	Grandeur caractérisant la largeur de la distribution stationnaire d'impulsion

2. Coefficients de Clebsch-Gordan

Nous rappelons ici la valeur des carrés des coefficients de Clebsch-Gordan pour le cas des transitions $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$ (Fig. M.2-1) et $J_g=1 \rightarrow J_e=2$ (Fig. M.2-2).

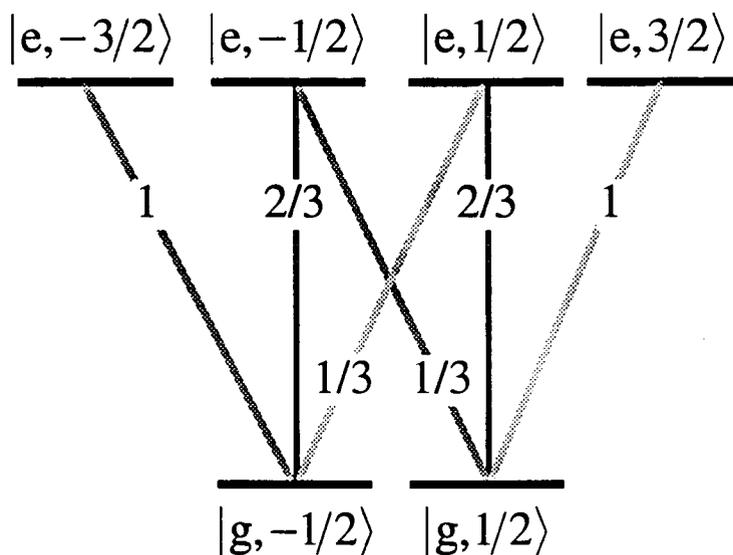


FIG. M.2-1 : Carrés des coefficients de Clebsch-Gordan dans le cas d'une transition $J_g=1/2 \rightarrow J_e=3/2$.

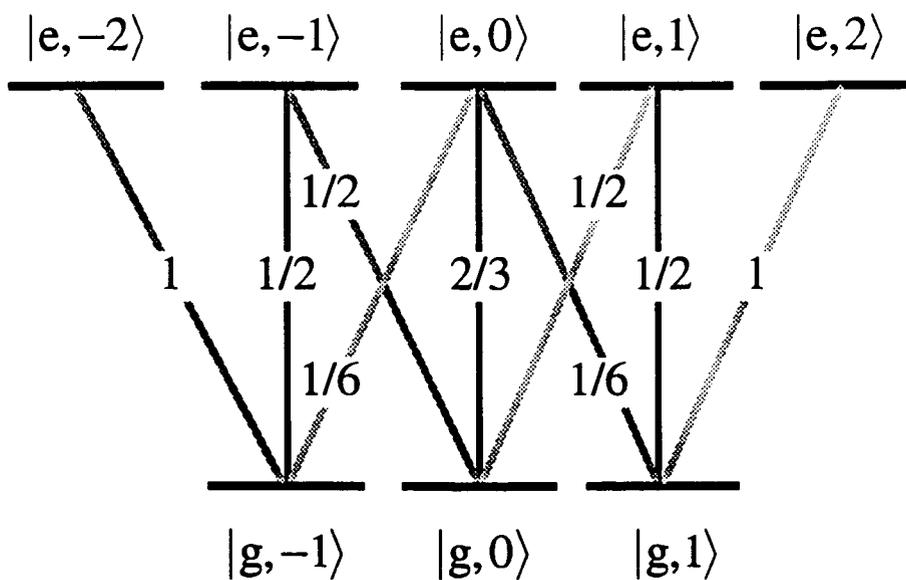


FIG. M.2-2 : Carrés des coefficients de Clebsch-Gordan dans le cas d'une transition $J_g=1 \rightarrow J_e=2$.

NOM : Jean-Yves COURTOIS

SUJET : Spectroscopie Raman et Rayleigh stimulée d'atomes refroidis par laser
Dynamique des mélasses optiques unidimensionnelles

RÉSUMÉ

La spectroscopie Raman et Rayleigh stimulée des atomes refroidis par laser donne accès à de nombreuses propriétés des mélasses optiques. Nous interprétons les spectres de transmission et de conjugaison de phase observés dans les deux configurations lasers à une dimension lin_Llin et $\sigma^+ - \sigma^-$. Dans le premier cas, les résonances Raman stimulées montrent la localisation et la quantification du mouvement atomique dans le potentiel créé par la lumière. Les résonances Rayleigh stimulées donnent des informations sur les propriétés dynamiques de la mélasse et prouvent l'ordre spatial anti-ferromagnétique des atomes. Dans le second cas, les structures Raman montrent l'existence de différences de populations et de déplacements lumineux dans l'état fondamental. La résonance Rayleigh donne un accès expérimental direct au coefficient de friction de la force de refroidissement.

ABSTRACT

Stimulated Raman and Rayleigh spectroscopy of laser-cooled neutral atoms provides much information about optical molasses. We interpret the transmission and phase-conjugation spectra observed in the one-dimensional lin_Llin and $\sigma^+ - \sigma^-$ laser configurations. In the first case, the stimulated Raman resonances demonstrate the occurrence of localization and quantization of atomic motion in the potential wells created by the laser light. The stimulated Rayleigh resonances give information about the dynamics and the anti-ferromagnetic spatial order of the atoms in the molasses. In the second case, the Raman structures prove the existence of differently populated and light-shifted ground-state sub-levels. The Rayleigh resonance gives a direct experimental access to the friction coefficient of the cooling force.

MOTS CLEFS

Spectroscopie Raman et Rayleigh stimulée — Pompage optique — Déplacements lumineux — Quantification du mouvement — Effet Lamb-Dicke — Ordre anti-ferromagnétique — Rotation Faraday — Diffraction de Bragg — Coefficient de friction des forces radiatives — Résonance Raman induite par le recul