Réalisation d'un micromaser à deux photons

Michel Brune

▶ **To cite this version:**

Michel Brune. Réalisation d'un micromaser à deux photons. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1988. Français. NNT : . tel-00011863

HAL Id: tel-00011863
https://theses.hal.science/tel-00011863

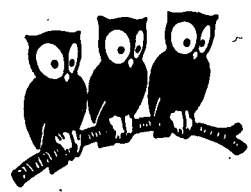
Submitted on 9 Mar 2006

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.

UNIVERSITÉ DE PARIS

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE



THESE

présentée pour obtenir

le titre de DOCTEUR de l'Université Paris VI

REALISATION D'UN MICROMASER A DEUX PHOTONS

par

MICHEL BRUNE

soutenue le 28 Juin 1988 devant le jury composé de :

Mr B. CAGNAC (Président)
Mr M. DUCLOY
Mr S. HAROCHE
Mme C. LHUILLIER
Mr C. MANUS
Mme N. POTTIER
Mr J.M. RAIMOND

THESE

présentée pour obtenir

le titre de DOCTEUR de l'Université Paris VI

REALISATION D'UN MICROMASER A DEUX PHOTONS

par

MICHEL BRUNE

soutenue le 28 Juin 1988 devant le jury composé de :

Mr B. CAGNAC (Président)
Mr M. DUCLOY
Mr S. HAROCHE
Mme C. LHUILLIER
Mr C. MANUS
Mme N. POTTIER
Mr J.M. RAIMOND

REMERCIEMENTS

Le travail présenté ici a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure au cours des années 1985-1988. L'accueil des professeurs Jean BROSSEL et Jacques DUPONT-ROC m'a permis de bénéficier d'un environnement scientifique remarquable.

Serge HAROCHE a dirigé ce travail. Jean-Michel RAIMOND a guidé pas à pas mes premières années de recherche. Je suis heureux que par leur compréhension de la physique et leur disponibilité ils m'aient fait partager leur enthousiasme.

Ce travail doit beaucoup à Philippe GOY dont la participation a été très active, à Luiz DAVIDOVICH avec qui nous avons eu la joie de collaborer pendant un an, ainsi qu'aux autres membres de l'équipe, Michel GROSS et Jean HARE pour leur précieux et amical soutien.

Que soient aussi remerciés les techniciens et ingénieurs du Laboratoire. Leur compétence et leur patience ont permis de donner une forme à nos idées. Merci aussi au Professeur Philippe BERNARD et à travers lui à tous les services du CERN qui ont généreusement contribué à ce travail.

Merci à tous ceux qui, par un conseil, un prêt ou une idée, ont amicalement aidé à la progression de notre travail et beaucoup enrichi son contenu.

Mesdames Claire LHUILLIER et Noëlle POTTIER ainsi que Messieurs Bernard CAGNAC, Martial DUCLOY et Claude MANUS ont accepté de participer au jury. Qu'ils soient remerciés pour l'intérêt qu'ils ont manifesté pour cette thèse.

Merci enfin à Mademoiselle Martine GUILLAUME qui a assuré la frappe de ce mémoire en un temps très bref, à Madame Michèle AUDOIN, Mademoiselle Isabelle GAZAN et Monsieur René MANCEAU qui ont eu la charge du tirage et de la reliure.

SOMMAIRE

INTRODUCTION p. 5

1) - Oscillateurs à deux photons et masers à atomes de Rydberg p. 6

2) - Intérêt des oscillateurs à deux photons p. 9

3) - Difficultés de construction d'un oscillateur à deux photons p. 11

4) - Atomes de Rydberg en cavités : le système idéal d'étude d'un oscillateur à deux photons p. 17

CHAPITRE I : CHOIX DES ELEMENTS EXPERIMENTAUX, PREMIERS RESULTATS p. 23

1) - Le choix de la transition atomique p. 25

2) - La cavité micro-onde p. 30

a) - Le facteur de qualité - limitations p. 31
b) - Description de la cavité p. 34
c) - Accord de la cavité p. 41

3) - L'excitation atomique p. 49

a) - Généralités sur les diodes laser p. 49
b) - La réalisation de l'excitation p. 54

4) - Premiers résultats expérimentaux p. 62

a) - Le montage et l'acquisition de données p. 62

b) - Spectroscopie de la raie à deux photons p. 66
c) - Le premier maser à deux photons p. 70

CHAPITRE II : THEORIE SEMI-CLASSIQUE DU MASER A DEUX PHOTONS p. 75

1) - Calcul de l'évolution atomique à deux photons p. 75

2) - Calcul du seuil du maser p. 83

a) - Eléments du modèle p. 85
b) - Calcul du gain atomique p. 86
c) - Calcul du seuil d'oscillation p. 91
d) - Comparaison semi-classique des masers (lasers) ordinaires et des masers (lasers) à deux photons p. 94

3) - Etude de la transition à deux photons induite par un champ extérieur p. 97

4) - La transition à deux photons dans le maser p. 98

5) - Multistabilité et chaos dans un oscillateur à deux photons p. 100

CHAPITRE III : PRESENTATION DE LA THEORIE QUANTIQUE DU MICROMASER A DEUX PHOTONS p. 107

1) - Interaction d'un atome à deux niveaux et d'un champ quantique p. 108

2) - Description quantique du champ du maser - Généralités p. 113

a) - Equation pilote de la matrice densité du champ p. 113

b) - Description du champ micro-onde dans le maser p. 116

3) - Principe de l'étude théorique - Résultats p. 121

a) - Dynamique du micromaser à deux photons p. 122
b) - Propriétés statistiques du champ dans le maser p. 132

CONCLUSION p. 139

LISTE DES REFERENCES PAR CHAPITRE p. 143

APPENDICE A : Détails techniques sur la réalisation de la cavité p. 152

APPENDICE B : Atome habillé à deux photons. Oscillations de Rabi p. 165

APPENDICE C : "Quantum theory of a two-photon micromaser" p. 177

L. Davidovich, J.M. Raimond, M. Brune and S. Haroche, Phys. Rev. A 36, 3771 (1987).

INTRODUCTION

Oscillateurs à Deux Photons et

Masers à Atomes de Rydberg

INTRODUCTION

OSCILLATEURS A DEUX PHOTONS ET MASERS A ATOMES DE RYDBERG

Nous avons réalisé le premier oscillateur maser fonctionnant sur une transition atomique à deux photons. C'est un maser continu à atomes de Rydberg. L'intérêt qu'il suscite est double : c'est à la fois un système quantique utilisant un processus atomique intrinsèquement non linéaire, et un oscillateur "microscopique". Il appartient à cette nouvelle classe de systèmes d'optique quantique qu'il est maintenant convenu d'appeler micromaser. Ce sont des dispositifs expérimentaux où, à la limite, un seul atome en interaction avec quelques photons suffit à entretenir une oscillation continue du champ.

Nous allons d'abord montrer que l'association d'atomes de Rydberg et d'une cavité supraconductrice est une situation qui bouleverse les conditions de réalisation expérimentales d'un oscillateur à deux photons : cette solution élimine toutes les difficultés auxquelles on s'était toujours heurté jusqu'à présent (Introduction). Nous aborderons ensuite la description détaillée des éléments expérimentaux de notre maser (Chap. I) et la discussion des premiers résultats. Les chapitres (II) et (III) seront consacrés à une étude théorique des propriétés des oscillateurs à deux photons d'un point de vue d'abord semi-classique (Chap. II) puis purement quantique (Chap. III). Chaque fois que cela sera possible, nous nous attacherons à relier les résultats expérimentaux aux prédictions de ces modèles. Nous mettrons aussi l'accent, tout au long de l'exposé, sur les différences entre les oscillateurs à deux photons et les masers ou lasers ordinaires.

1) - Oscillateurs à deux photons et masers à atomes de Rydberg

Le principe d'un laser (ou maser) à deux photons est tout à fait similaire à celui d'un laser ordinaire : un milieu atomique, dans lequel une inversion de population a été produite, crée, par émission stimulée, un champ électromagnétique dans une cavité. La différence réside dans le processus élémentaire d'interaction qui couple les atomes au champ : dans un laser à un photon, un seul photon de fréquence ω, est émis par transition atomique (Fig. 0.1.a). Par contre, dans notre cas (Fig. 0.1.b), chaque transition consiste en l'émission d'une paire de photons. Ces deux photons n'ont pas nécessairement la même fréquence, pourvu que la relation (1) soit vérifiée :

$$\hbar (\omega_1 + \omega_2) = E_e - E_f \qquad (1)$$

E_e et E_f sont les énergies des niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$.

Un tel système est une généralisation naturelle du concept ordinaire de laser à un photon. Son principe a été proposé dès le début des années 60 et a suscité depuis un grand intérêt tant d'un point du vue théorique qu'expérimental. Pourtant, aucune réalisation pratique n'a été possible avant l'apparition dans le domaine de l'optique quantique des masers à atomes de Rydberg.

Ces masers sont des oscillateurs dans lesquels le milieu actif est constitué d'un jet d'atomes très excités qui traversent un résonateur micro-onde de très grande surtension, accordé sur une transition atomique entre niveaux voisins [M. Gross et al. 1979, L. Moi et al. 1983, D. Meschede et al. 1985]. Leur principe de fonctionnement est le même que celui des lasers ou masers habituels. Leur spécificité réside dans la valeur extraordinairement faible du flux d'atomes excités nécessaire pour voir apparaître une oscillation : à la limite, un seul atome de temps en temps dans la cavité suffit. Ces oscillateurs appelés micromasers ont été réalisés aussi bien en régime transitoire (accélération de l'émission spontanée) [P. Goy et al. 1983] qu'en régime continu

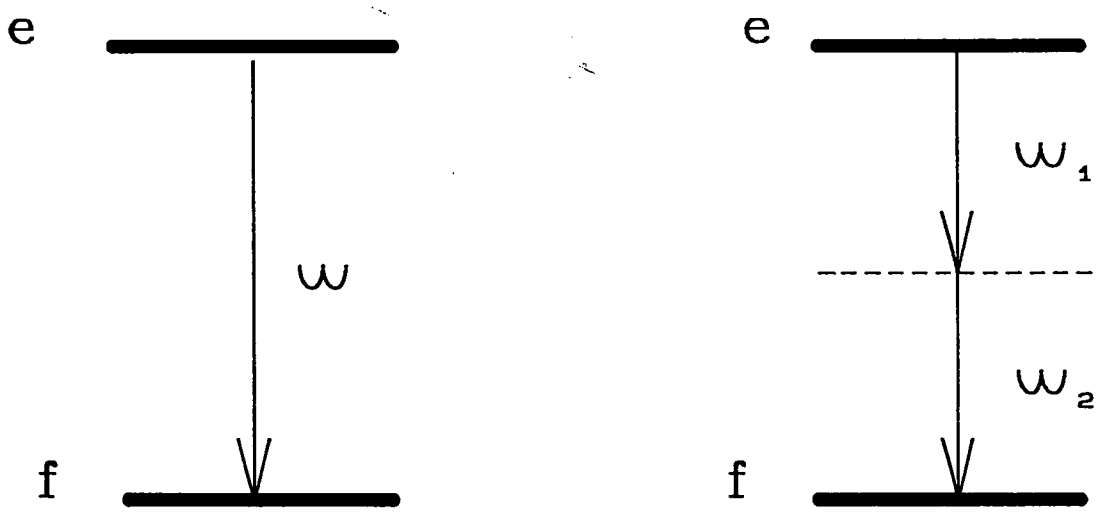


figure 0.1

(maser à un atome ou micromaser) [D. Meschede et al. 1985]. La raison de ces conditions exceptionnelles de fonctionnement est l'existence dans ces systèmes d'un couplage particulièrement fort entre matière et rayonnement.

De par leur nature simple et fondamentale, ces oscillateurs microscopiques font l'objet d'un intérêt théorique considérable [P. Filipowicz et al. 1986 A et B, P. Meystre 1987, L. Lugiato et al. 1987]. Ils sont en fait des réalisations presque idéales de modèles introduits lors des débuts de l'électronique quantique. Ils ont rendu possible la réalisation d'expériences sur le couplage entre atomes à deux niveaux et un seul mode du champ électromagnétique qui étaient jusqu'alors considérées comme de pures expériences de pensée irréalistes : superradiance de Dicke [J.M. Raimond et al. 1982], oscillations de Rabi auto-induites d'une population atomique de N atomes [Y. Kaluzny et al. 1983], et systèmes à un atome [G. Rempe et al. 1987] ont été réalisés ou sont en cours d'étude.

Dans les masers à atomes de Rydberg étudiés jusqu'à présent, le processus fondamental d'interaction entre champ et matière consistait en l'émission d'un photon par transition atomique. Notre expérience a permis d'étendre le fonctionnement de ces systèmes à des transitions à deux photons [M. Brune 1987]. Notre système réunit donc deux nouvelles propriétés remarquables : c'est le premier oscillateur quantique fonctionnant spontanément, en continu à partir d'un effet intrinsèquement non linéaire, et, de même que le micromaser à un photon à atomes de Rydberg, c'est un système microscopique où se manifestent des effets quantiques qui sont généralement masqués par les fluctuations de nature statistique dans les systèmes macroscopiques d'optique quantique.

Dans ce chapitre nous allons montrer comment le micromaser à deux photons se rattache aux études précédentes dans ces deux domaines : oscillateurs à deux photons et systèmes microscopiques. Nous commencerons par un bref résumé (§ 2) des propriétés intéressantes prévues dans les oscillateurs ou amplificateurs à deux photons et qui les différencient des lasers

ou masers habituels. Nous analyserons alors les raisons qui ont rendu impossible la réalisation expérimentale de ces systèmes avec des atomes ou molécules "ordinaires" (§ 3), et nous montrerons comment les systèmes d'atomes de Rydberg en cavité permettent de surmonter ces difficultés (§ 4). Nous présenterons finalement un modèle simplifié de notre maser. Il nous permettra d'estimer son seuil d'oscillation de façon élémentaire et de mettre en évidence le régime de micromaser (§ 5).

2) - Intérêt des oscillateurs à deux photons

L'idée d'obtenir un effet laser à partir d'une transition atomique à deux photons a été proposée dès les débuts de l'électronique quantique [Prokhorov 1965, Sorokin et Braslau 1964]. L'intérêt pour ces systèmes est multiple. Tout d'abord, dans un processus d'interaction atome-champ intrinsèquement non linéaire, les phénomènes de saturation n'apparaissent que pour des intensités du champ beaucoup plus grande que dans le cas d'une transition à un photon. L'utilisation d'un processus à deux photons présente donc un très grand intérêt pratique en ce qui concerne l'obtention d'une amplification optique de très grande puissance. Pour cette raison, un grand nombre de travaux théoriques ont étudié la propagation et l'amplification d'impulsions lumineuses dans un milieu susceptible de présenter des transitions à deux photons [V.S. Letokhov et al. 1968, L.E.Estes et al. 1979, H.P. Yuen et al. 1975 A, L.M. Narducci et al. 1977]. Un second intérêt réside dans les possibilités d'accord du champ produit [A.M. Prokhorov 1965] : elles sont, en principe, très grandes puisque une seule transition atomique à deux photons est susceptible d'émettre tout couple de fréquences dont la somme correspond à la fréquence de la transition atomique considérée. On a, par ailleurs, montré que le simple fait que les photons soient émis par paires très corrélées devait conduire à des champs électromagnétiques aux propriétés statistiques très différentes de celles des champs classiques produits par les lasers ou masers ordinaires. A partir d'un "hamiltonien" effectif où le processus à deux photons apparaît dans des termes quadratiques

vis-à-vis des opérateurs de création et d'annihilation de photons, on peut montrer que l'opérateur d'évolution pour ce système a exactement la forme requise pour générer un état comprimé du champ dans l'oscillateur [H.P. Yuen 1975 B, 1976]. On s'attend enfin à ce que le comportement dynamique des lasers à deux photons, qui a été étudié dans plusieurs papiers [M. Nayak 1979, T. Hoshimiya 1978, Z.C. Wang and H. Hacken 1984], soit très différent de celui des lasers ordinaires. Dans un point du vue "d'auto-organisation" introduit par Hacken [H. Hacken 1983], on s'attend à ce que le démarrage d'un oscillateur à deux photons lorsque le seuil est atteint, soit une transition de phase discontinue du premier ordre alors que celui d'un laser ou maser ordinaire est une transition continue du second ordre [Z.C. Wang 1983]. Une des propriétés de base d'une transition de phase du premier ordre est l'existence possible d'un état métastable "désordonné" en-dessous du point de transition de phase. Dans les oscillateurs à deux photons constitués d'un grand nombre d'atomes, on s'attend à ce que l'état vide du champ soit un tel état métastable lorsque le seuil d'oscillation est franchi. Le démarrage du laser nécessiterait l'injection d'un champ extérieur de déclenchement pour induire la transition vers l'état ordonné qui est ici l'état "maser allumé". Ceci est l'analogue d'une solidification : c'est une transition de phase qui peut nécessiter, pour se produire, l'introduction d'un germe dans le système en surfusion. Dans les oscillateurs à deux photons microscopiques toutefois, les fluctuations internes du système pourront devenir suffisantes pour déclencher l'oscillation.

La possibilité offerte ici de préparer un milieu optique dans un état métastable de très grande énergie et de déclencher l'émission de cette énergie par injection d'un petit signal a été une des propriétés les plus attrayantes des systèmes à deux photons, en particulier pour la réalisation d'amplificateurs en régime impulsionnel. Plusieurs tentatives ont été menées dans cette direction. Le phénomène d'émission stimulée à deux photons a été obtenu, mais la réalisation d'un véritable oscillateur à deux photons s'est toujours heurtée à de très grosses difficultés pratiques.

3) - Difficultés de construction d'un oscillateur à deux photons

Les lasers ou masers à deux photons appartiennent à la famille des systèmes d'optique quantique utilisant un couplage au second ordre entre atome et radiation dans une configuration atomique à trois niveaux. La figure (0.2) résume les différents types d'effets qui peuvent se produire dans de tels systèmes. Nous appelons $|e\rangle$ et $|f\rangle$ (d'énergies E_e et E_f) les niveaux de même parité entre lesquels l'atome (ou la molécule) subit la transition à deux photons, et $|i\rangle$ (énergie E_i) un niveau intermédiaire de parité opposé qui n'est que virtuellement impliqué dans le processus non linéaire. Il est caractérisé par son couplage au premier ordre avec les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ et par Δ, le désaccord entre la transition à un photon $|e\rangle \longrightarrow |i\rangle$ et le champ de fréquence ω_1 (c'est d'ailleurs aussi le désaccord entre la transition $|i\rangle \longrightarrow |f\rangle$ et ω_2). Nous caractérisons ici les couplages au premier ordre entre ($|e\rangle$ et $|i\rangle$) d'une part et ($|i\rangle$ et $|f\rangle$) d'autre part par les éléments de matrice dipolaires :

$$\vec{d}_{ei} = \langle e|\vec{d}|i\rangle \qquad (2)$$

et

$$\vec{d}_{if} = \langle i|\vec{d}|f\rangle \qquad (2')$$

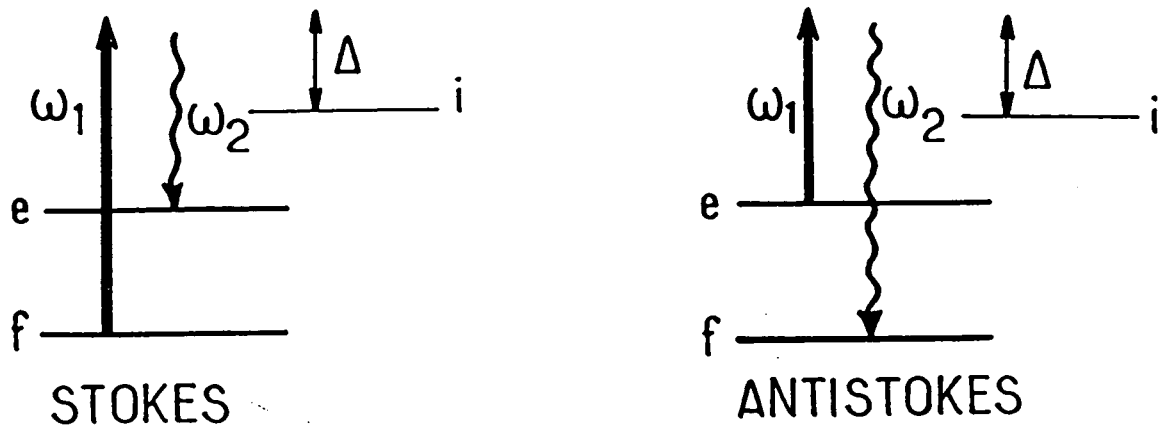
ou encore par les pulsations de Rabi dites "à un photon" (c'est-à-dire correspondant à des transitions à un photon)

$$\Omega_{ei} = \frac{\vec{d}_{ei}\cdot\vec{\mathcal{E}}_1}{\hbar} \qquad (3)$$

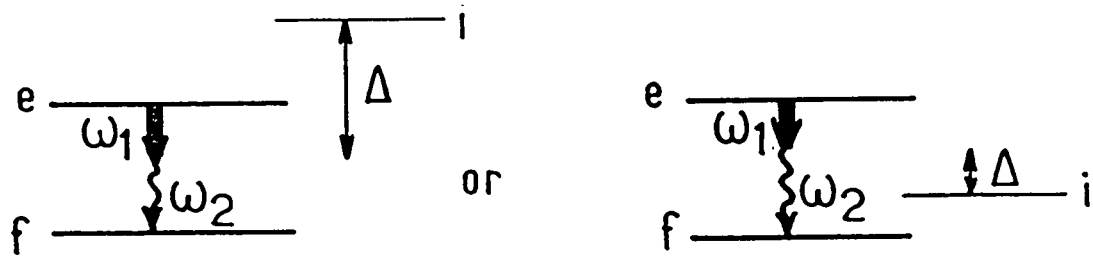
et

$$\Omega_{if} = \frac{\vec{d}_{if}\cdot\vec{\mathcal{E}}_2}{\hbar} \qquad (3')$$

a) Effet Raman stimulé



b) Transition assistée à deux photons



c) Oscillateur à deux photons

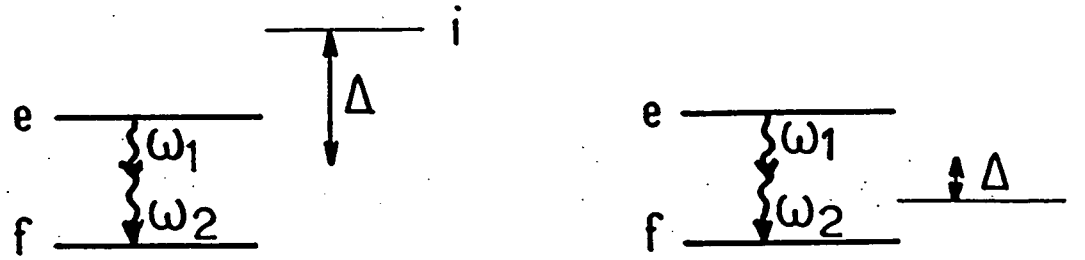


figure 0.2

où $\mathcal{E}_1$ et $\mathcal{E}_2$ sont les amplitudes des champs de fréquences respectives ω_1 et ω_2 auxquels les atomes sont soumis. Notons que le niveau |i> peut se trouver soit à l'intérieur soit à l'extérieur de l'intervalle d'énergie entre |e> et |f>.

Les deux processus présentés en figure (0.2.a) sont connus sous le nom d'effet Raman stimulé : les atomes interagissent avec un faisceau "pompe" de fréquence ω_1 et amplifient ou émettent un faisceau "sonde" de fréquence ω_2. La condition :

$$|\omega_1 - \omega_2| = \frac{E_e - E_f}{\hbar} \qquad (4)$$

doit être vérifiée. Le processus est une émission Stokes si $\omega_1 > \omega_2$ et antistokes sinon. Ce dernier cas nécessite évidemment une inversion de population entre les niveaux |e> et |f> (nous ne considérons ici que les processus incohérents, où les effets paramétriques et d'accord de phase n'ont pas à être pris en compte, ce qui laisse hors de notre propos la diffusion Raman antistokes cohérente).

La figure (0.2.b) présente des émissions stimulées à deux photons assistées par injection d'un photon. Cet effet est très analogue à l'effet Raman avec essentiellement une amplification de la pompe au lieu d'une absorption. Lorsqu'ils amplifient un champ appliqué de fréquence ω_1 (flèche épaisse), les atomes émettent simultanément un champ de fréquence ω_2 (flèche ondulée) vérifiant la relation (1). Ce processus, tout comme l'effet antistokes, nécessite une inversion de population.

Enfin, la figure (0.2.c) représente le processus impliqué dans le cas d'un authentique laser ou maser à deux photons : le milieu inversé rayonne, par émission stimulée, les deux photons de la transition (double flèche ondulée) sans assistance permanente d'aucun champ extérieur. L'injection d'un champ à la fréquence ω_1 peut être nécessaire au déclenchement de l'oscillation, mais, contrairement au cas de la figure (0.2.b), l'émission doit persister aussi longtemps que l'on maintient l'inversion de

population après avoir supprimé ce champ. Pour caractériser sans ambiguïté un tel oscillateur, il est alors essentiel d'être capable de distinguer temporellement le régime stationnaire d'oscillation par rapport à la phase initiale de déclenchement qui peut nécessiter l'injection d'un champ. Il faut donc obtenir un fonctionnement continu ou quasi-continu.

Les effets non linéaires présentés ici le sont dans l'ordre croissant de difficulté d'observation expérimentale. L'amplification Raman stimulée d'une composante Stokes est un effet bien connu dont l'observation ne nécessite aucune excitation atomique préalable [A. Yariv, et al. 1967]. L'amplification d'une raie antistokes dans un milieu atomique inversé est un processus non résonnant qui a été observé dans les années 70 [R.L. Carman, et al. 1974]. En ce qui concerne les processus où deux photons sont émis, l'observation d'une émission stimulée transitoire du type de la figure (0.2.b) a été rapportée plus récemment [M.M.T. Loy et al. 1978, B. Nikolaus et al. 1981]. Par contre, jusqu'à l'avènement des masers à atomes de Rydberg, aucun véritable oscillateur à deux photons du type de la figure (0.2.c) n'avait fonctionné avec succès malgré plusieurs tentatives.

Tous ces processus reposent sur un couplage qui apparaît entre les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ au second ordre de la théorie des perturbations. La constante de couplage a pour expression :

$$\Omega_{2\varphi} = \frac{\Omega_{ei}\,\Omega_{if}}{\Delta} = \frac{d_{ei}\,d_{if}\,\mathcal{E}_1\,\mathcal{E}_2}{\hbar^2\,\Delta} \qquad (5)$$

C'est aussi (à un facteur multiplicatif près) la pulsation de Rabi à deux photons entre les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$. La caractéristique essentielle de ce couplage est qu'il est proportionnel à l'inverse du désaccord Δ entre les champs et les transitions permises à un photon. La justification de l'approximation du système à trois niveaux apparaît clairement ici : dès que, parmi tous les niveaux couplés à $|e\rangle$ et $|f\rangle$, il en existera un pour lequel Δ est beaucoup plus petit que pour tous les autres, son rôle deviendra prépondérant. Dans le cas contraire, il serait nécessaire de sommer

les contributions de tous les états relais possibles. D'autre part, le gain d'une transition à deux photons sera d'autant plus fort que les fréquences des champs seront voisines des résonances à un photon (toutefois, pour que ce calcul de perturbation reste valable, il faut que Δ reste grand comparé à Ω_{ei} et Ω_{if}).

Pour augmenter l'efficacité des processus où deux photons sont émis, l'idée naturelle consiste alors à choisir la situation où |i> est situé entre |e> et |f> (diagrammes de droite des figures (0.2.b) et (0.2.c). Il y a cependant dans ce cas une inversion de population directe entre les niveaux de parité opposée |e> et |i>. Le couplage à un photon au premier ordre entre ces niveaux, sera alors généralement l'effet dominant (superradiance). Pour éviter cette difficulté, on a proposé [H. Komine 1975, D.S. Bethune 1978] d'utiliser une transition sans niveau intermédiaire entre |e> et |f> (partie gauche des figures (0.2.b) et (0.2.c) et de compenser la très faible valeur intrinsèque du gain par une inversion de population suffisamment grande. En dépit des efforts consentis [J.H. Glownia et al. 1985], aucun résultat n'a été obtenu avec de tels systèmes. Une des difficultés rencontrées dans cette configuration de niveaux est la plus grande probabilité du processus Stokes dans lequel un photon de fréquence ω_1 (ou ω_2) est absorbé dès qu'il existe un champ à cette fréquence dans le milieu et en particulier dans le cas où ce champ est injecté. Une des raisons qui favorise cet effet Stokes est que la valeur de Δ qui lui correspond est plus faible que pour le processus à deux photons [R.L. Carman et al. 1975]. En fait, les seules observations d'amplification et d'émission à deux photons ont été faites en régime transitoire sur des systèmes du type de la partie droite de la figure (0.2.b), ce qui permet de battre, sur un temps court, la concurrence de la superradiance vers le niveau |i>. Une émission transitoire à deux photons a été observée dans des molécules d'ammoniac qui avaient subi une inversion adiabatique à deux photons [M.M.T. Loy et al. 1978]. L'émission d'impulsions de fréquence ω_2 stimulée par l'injection d'une impulsion de fréquence ω_1 a été observée dans une vapeur de lithium pompée optiquement [B. Nikolaus et al. 1981].

Toutes ces tentatives se sont heurtées à la valeur intrinsèquement faible du gain pour un processus non linéaire du second ordre et à l'impossibilité d'éliminer les processus concurrents possibles dans ce système à trois niveaux couplé à deux modes du champ.

Dans les expériences citées ci-dessus, aucune cavité résonnante n'était présente pour les fréquences ω_1 et ω_2. L'introduction de cet élément est pourtant essentielle dans la réalisation d'un oscillateur à deux photons. Une cavité permet tout d'abord d'assurer la nécessaire contre réaction du champ émis sur le milieu atomique pour atteindre un régime d'oscillation continue. Dans le cas d'un système à deux photons, elle est aussi très utile pour sélectionner les fréquences auxquelles le système va réellement osciller parmi le continuum de fréquences possibles vérifiant la condition (1). Enfin, elle peut jouer ici un autre rôle important : si elle a une grande finesse et si elle résonne à des fréquences différentes de $(E_e - E_i)/\hbar$, elle favorisera le processus à deux photons par rapport à l'émission d'un photon vers le niveau $|i\rangle$, même si Δ a une valeur relativement faible.

Cela suggère une procédure simple pour réaliser un laser à deux photons : dans une première étape, on réalise un double laser à un photon à partir des deux transitions en cascade $|e\rangle \longrightarrow |i\rangle$ et $|i\rangle \longrightarrow |f\rangle$. Cela est obtenu avec une cavité ayant un mode résonnant avec chacune des deux transitions. On tente alors de désaccorder simultanément les deux modes de la cavité tout en respectant la condition (1). Une telle expérience a été tentée il y a quelques années avec un laser Helium-Néon [H. Schlemmer et al. 1980]. Une certaine gamme d'accord a été observée mais le gain à deux photons n'était pas suffisant pour que Δ puisse dépasser la largeur Doppler des raies à un photon. Cette expérience a prouvé qu'un processus cohérent à deux photons entrait en compétition avec les effets à un photon, résultat bien connu depuis les premières études de spectroscopie laser dans des systèmes à trois niveaux, mais il n'a pas été possible de séparer clairement les deux sortes d'émission.

4) - Atomes de Rydberg en cavités : le système idéal d'étude d'un oscillateur à deux photons

L'originalité des oscillateurs à atomes de Rydberg réside dans une valeur exceptionnelle du couplage entre matière et rayonnement par rapport aux atomes "ordinaires". Ce couplage repose en effet sur les éléments de matrice dipolaires électriques entre niveaux atomiques voisins de parités opposées, dont la valeur croît comme le carré du nombre quantique principal n lorsque l'on considère des niveaux atomiques de plus en plus excités. On gagne sur ces éléments de matrice un facteur 1600 environ pour n 40 par rapport au cas des transitions optiques entre niveaux peu excités.

D'autre part, la durée de vie d'un état excité croît comme n^3. les états de Rydberg sont donc susceptibles d'interagir avec le champ pendant des temps relativement longs (typiquement 40 μs pour un état 40s au lieu de 10^{-8} s pour un niveau profond) et donc d'évoluer notablement même lorsqu'ils interagissent avec un champ très peu intense.

Enfin, la fréquence des transitions entre deux niveaux voisins varie comme n^{-3}. Pour n de l'ordre de 40, ces fréquences valent une centaine de GHz. C'est un domaine de longueur d'onde où il est possible de réaliser des cavités résonnantes supraconductrices de très haute finesse dont les dimensions sont voisines de la longueur d'onde (λ 3mm à ν 100 GHz). Ces résonateurs opèrent alors dans un mode d'ordre très peu élevé dont le volume effectif est très faible. De telles cavités permettent d'obtenir les champs électriques oscillants les plus intenses possibles à partir d'une quantité d'énergie électromagnétique donnée. L'amplitude $\mathcal{E}$ du champ créé par N photons de fréquence ω est en effet donnée par(*) :

$$2\,\varepsilon_0\,\mathcal{E}^2\,\mathcal{V} = N\,\hbar\,\omega \qquad (6)$$

(*) On utilise ici la convention $E(t) = \mathcal{E}\,(e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$.

où $\mathcal{V}$ est le volume effectif du mode résonnant à la fréquence ω. La relation (6) exprime simplement que l'énergie du champ est répartie dans tout le volume du mode.

Les atomes de Rydberg en cavité optimisent donc le couplage atome-champ grâce à la fois à de grands dipôles et à la possibilité d'obtenir des champs "intenses" même avec très peu de photons : lorsqu'un atome de Rydberg d'un jet thermique traverse une telle cavité accordée sur une transition à un photon, le champ d'un seul photon suffit à induire une oscillation de Rabi complète.

D'autre part, grâce à l'utilisation de matériaux supraconducteurs, les facteurs de qualité accessibles en pratique pour des fréquences millimétriques sont si grands que nous sommes dans un régime où le temps d'amortissement du champ est long devant le temps d'interaction de chaque atome. On peut ainsi négliger la relaxation à l'échelle d'un atome et étudier l'interaction d'un seul atome avec son propre rayonnement [P. Goy et al. 1983, D. Meschede et al. 1985]. Pour la réalisation d'un maser, ces cavités permettent de fournir la contre-réaction nécessaire à l'obtention d'une oscillation continue avec des seuils très faibles : puisqu'un photon suffit à induire efficacement une transition et que le temps de stockage de ce photon est plus long que le temps d'interaction d'un atome, on peut réaliser un oscillateur avec à chaque instant un milieu actif constitué d'au plus un atome ! [D. Meschede 1985].

Dans le cas d'un oscillateur à deux photons, la cavité joue un rôle supplémentaire : grâce à son faible volume, elle n'a que très peu de modes au voisinage de la fréquence qui nous intéresse. Elle va donc être particulièrement utile pour sélectionner les fréquences auxquelles le système va réellement osciller parmi le continuum de fréquences possibles vérifiant la relation (1). Par ailleurs, grâce à sa grande finesse, et si aucun mode ne vient coïncider avec les fréquences des transitions à un photon $|e\rangle \longrightarrow |i\rangle$ et $|i\rangle \longrightarrow |f\rangle$, elle va permettre l'inhibition de ces processus à un photon [R.G. Hulet et al. 1985] même si Δ est relativement petit. Cette inhibition peut être totale car les

cavités utilisées ici sont des cavités closes ce qui interdit toute possibilité de rayonnement hors des modes du résonateur.

Cette faculté d'inhibition totale de tout processus non résonnant avec un mode, est essentielle car elle permet de considérer les atomes de Rydberg comme des systèmes à deux niveaux couplés à un seul mode du champ électromagnétique.

Ces systèmes apparaissent donc comme particulièrement bien adaptés pour la réalisation d'un oscillateur à deux photons puisque les constantes de couplage atome-champ y sont intrinsèquement grandes et qu'il est maintenant possible de tirer le meilleur parti du niveau relais $|i\rangle$ tout en s'affranchissant des inconvénients de sa nécessaire présence.

Par ailleurs, si on considère les transitions à deux photons entre états s voisins d'atomes alcalins très excités, on constate qu'il existe un certain nombre de valeurs du nombre quantique principal n pour lesquelles un état p est situé pratiquement à égale distance (en énergie) de ces deux niveaux s. On peut donc minimiser Δ tout en se plaçant dans la situation particulièrement simple d'une transition dégénérée à deux photons où les deux photons émis ont même fréquence. C'est ici un avantage considérable par rapport au cas optique où, dans le cas d'une transition dégénérée, Δ est en général du même ordre de grandeur que la fréquence de la transition. Nous n'avons plus maintenant qu'à considérer un seul mode du champ et son couplage avec les deux niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$. Cette simplification présente un intérêt expérimental considérable pour la réalisation de la cavité dont l'accord d'un seul mode est maintenant suffisant.

La constante de couplage à deux photons vaut désormais :

$$\Omega_{2\varphi} = \frac{d_{ei}\, d_{if}\, \mathcal{E}^2}{\hbar^2\ \Delta} \qquad (7)$$

$\mathcal{E}$ est l'amplitude du champ électrique de fréquence ω.

Il est utile pour la suite d'introduire $\bar{N}$, le nombre moyen de photons présents dans la cavité. L'amplitude $\mathcal{E}$ du champ électrique vaut alors :

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 \sqrt{\bar{N}} \tag{8}$$

où $\mathcal{E}_0 = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\varepsilon_0 \mathcal{V}}}$ est l'amplitude du champ créé par un photon dans la cavité. $\mathcal{V}$ est le volume effectif du mode de la cavité. Les constantes de couplage à un et deux photons sont maintenant :

$$\Omega_{i\varphi}^{ei} = \frac{d_{ei}\mathcal{E}_0}{\hbar}\sqrt{\bar{N}} = \Omega_i^{ei}.\sqrt{\bar{N}} \tag{9}$$

$$\Omega_{i\varphi}^{if} = \frac{d_{if}\mathcal{E}_0}{\hbar}\sqrt{\bar{N}} = \Omega_i^{if}.\sqrt{\bar{N}} \tag{9'}$$

$$\Omega_{2\varphi} = \frac{d_{ei}d_{if}\mathcal{E}_0^2}{\hbar^2\ \Delta}\bar{N} = \Omega_2.\bar{N} \tag{10}$$

5) - <u>Estimation du seuil d'oscillation</u>

Nous faisons ici un simple bilan qualitatif du gain et des pertes pour le champ dans la cavité dans le cas d'un maser à deux photons. Nous considérons tout d'abord que l'amplitude du champ en régime stationnaire est telle qu'il induit sur chaque atome une émission à deux photons avec une probabilité de l'ordre de 1. Cela s'exprime par la condition :

$$2.\Omega_2.\bar{N} \times t_{int} = \pi \tag{11}$$

t_{int} est le temps d'interaction moyen de chaque atome avec le champ c'est-à-dire le temps de vol dans la cavité. Le gain atomique par unité de temps vaut alors :

$$\left(\frac{dN}{dt}\right)_{gain} = \frac{2}{t_{at}} \qquad (12)$$

où t_{at}^{-1} est le flux atomique, c'est-à-dire le nombre d'atomes traversant la cavité par seconde. Le taux de pertes de la cavité est :

$$\left(\frac{dN}{dt}\right)_{pertes} = -\frac{N}{t_{cav}} \qquad (13)$$

t_{cav} étant le temps d'amortissement de l'énergie électromagnétique dans la cavité. Il dépend du facteur de qualité Q et de la fréquence de résonance ω par la relation :

$$t_{cav} = \frac{Q}{\omega} \qquad (14)$$

L'égalité du gain et des pertes en régime stationnaire s'exprime par la relation :

$$\frac{N}{t_{cav}} = \frac{2}{t_{at}} \qquad (15)$$

De (11) et (15) on tire immédiatement le nombre de photons et le flux atomique au seuil :

$$\begin{cases} \dfrac{1}{t_{at}} = \dfrac{\pi}{4\Omega_2 \; t_{int} \; t_{cav}} \\ \\ \bar{N} = \dfrac{2t_{cav}}{t_{at}} \end{cases} \qquad (16)$$

En utilisant les valeurs des paramètres données au chapitre I, on trouve alors qu'une oscillation continue peut être obtenue pour :

$$\frac{1}{t_{at}} = 2.10^4 \text{ at/s}^{-1}, \quad t_{at} = 44 \ \mu s$$

$$\bar{N} \simeq 20 \text{ photons}$$

La valeur du temps séparant deux atomes (t_{at}) est supérieure au temps d'interaction d'un atome avec le champ ($t_{int} \approx 25\ \mu s$). Cela montre qu'il y a, en moyenne, à chaque instant, au plus un atome dans la cavité. Au seuil, on est donc dans un régime de micromaser.

En fait, un calcul plus rigoureux doit prendre en compte la dispersion des temps d'interaction atomique dans un jet thermique (distribution de vitesse maxwellienne), la durée de vie finie des atomes et la forme précise de l'amplitude du champ dans la cavité. Cela, comme nous le montrerons, ne change pas les ordres de grandeur (on trouve alors $t_{at}^{-1} = 2\ 10^{5}$ at/s et $\bar{N} \sim 50$). Il est donc remarquable que, même pour un processus à deux photons, c'est-à-dire du second ordre, la valeur du taux de pompage à atteindre pour obtenir une oscillation maser avec des atomes de Rydberg est, là encore, plusieurs ordres de grandeur plus faibles que dans le cas de lasers ou masers habituels.

Il ne nous reste plus maintenant qu'à préciser les valeurs réalisables en pratique pour tous les paramètres introduits ici pour achever la démonstration de la particulière adéquation des atomes de Rydberg en cavité au problème de la réalisation d'un oscillateur à deux photons (partie I).

La partie (II) sera alors consacrée à un modèle semi-classique de notre oscillateur microscopique où il apparaîtra que toutes les causes de fluctuations et en particulier les fluctuations quantiques (émission spontanée, effet de la statistique d'un champ à petit nombre de photons, ...) doivent être prises en compte pour la description des propriétés dynamiques du système. Cela nous conduira à présenter en partie (III) une théorie purement quantique du maser à deux photons.

CHAPITRE I

CHOIX DES ELÉMENTS EXPÉRIMENTAUX,

PREMIERS RÉSULTATS

CHAPITRE I

CHOIX DES ELEMENTS EXPERIMENTAUX
PREMIERS RESULTATS

La réalisation du micromaser à deux photons à atomes de Rydberg a reposé sur trois points essentiels : (i) le choix d'une transition à deux photons parmi toutes les configurations de niveaux favorables existant dans le spectre des alcalins ; (ii) la construction d'une cavité microonde supraconductrice de très haute finesse ; (iii) la mise au point d'une excitation laser permettant d'atteindre le seuil d'oscillation.

Avant d'aborder chacun de ces points en détail, rappelons tout d'abord le principe (Fig. I.1) d'un maser à atomes de Rydberg [L. Moi et al. 1983, P. Goy et al. 1983, S. Haroche et al. 1984, S. Haroche et al. 1985, J.A.C Gallas et al. 1985, P. Filipowicz et al. 1986] : il est constitué d'un jet atomique traversant trois zones spatialement distinctes jouant chacune un rôle spécifique. La première est la zone de préparation des atomes de Rydberg où l'on peuple par excitation laser (et éventuellement micro-onde) le niveau supérieur de la transition maser à étudier. Dans notre cas, les lasers excitent le jet atomique à angle droit, donc sans effet Doppler (au premier ordre) et sans sélection des vitesses longitudinales des atomes. Le jet traverse ensuite la cavité résonnante accordée sur la fréquence d'une transition atomique où les atomes interagissent avec le champ qu'ils bâtissent par émission stimulée. Finalement, à la sortie du résonateur, on détecte sélectivement la population de chacun des niveaux de Rydberg participant à la transition considérée par la technique désormais habituelle d'ionisation par champ [T.W. Ducas et al. 1975, T.F. Gallagher et al. 1977, J.L. Vialle et al. 1979] : on ionise les états de Rydberg en leur appliquant un champ électrique "statique" (500 V/cm suffisent ici) et on détecte les électrons

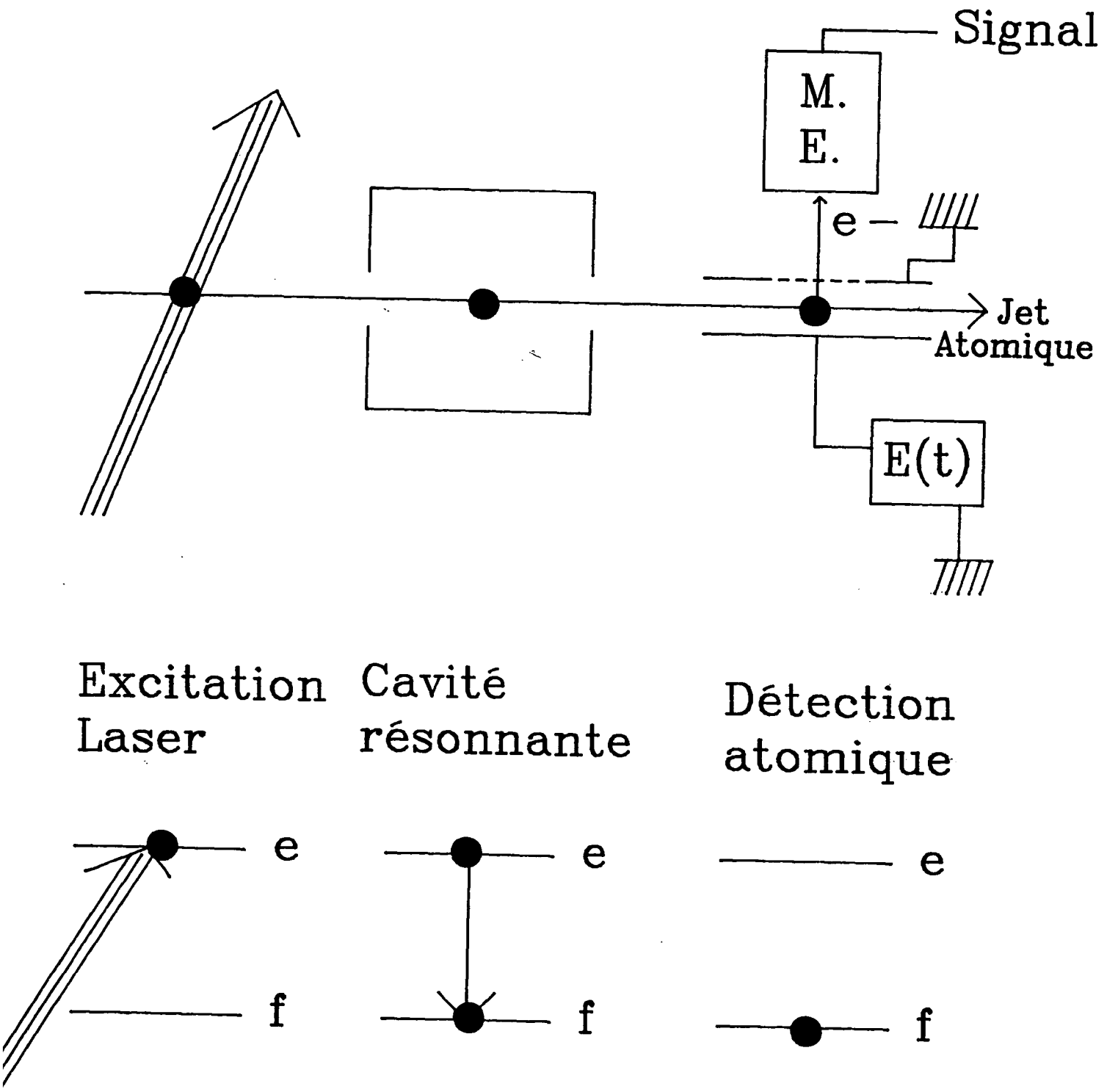

Signal
M.
E.
e –
Jet
Atomique
E(t)
Excitation
Laser
Cavité
résonnante
Détection
atomique
e
f
e
f
e
f

Figure I. 1

arrachés à l'aide d'un multiplicateur d'électrons. Comme le seuil d'ionisation dépend du niveau atomique considéré, on peut, par cette technique, détecter sélectivement les différents niveaux peuplés, et donc mesurer le taux de transfert entre les états atomiques impliqués dans la transition. C'est ainsi que nous détectons indirectement le champ micro-onde du maser. Une détection de ce champ indépendante des atomes serait beaucoup plus difficile : au seuil, la puissance émise est de l'ordre de 10^{-18} W seulement.

Notre schéma expérimental n'est évidemment envisageable que grâce à la durée de vie relativement longue d'un état de Rydberg : 37,5 μs dans notre cas. Cela correspond à une distance parcourue de l'ordre du cm pour un jet thermique à 300 m/s. Etant donné que la distance entre l'entrée de la cavité et le centre de la zone de détection correspond à un temps de vol de l'ordre de trois durées de vie, nous ne sommes pas dans le cas idéal où on détecterait tous les atomes ayant interagi avec la cavité. Nous ne pouvons donc détecter qu'une petite fraction (1/13) du nombre d'atomes effectivement présents dans la cavité, nombre qui décroît d'ailleurs à l'intérieur du résonateur le long du jet atomique.

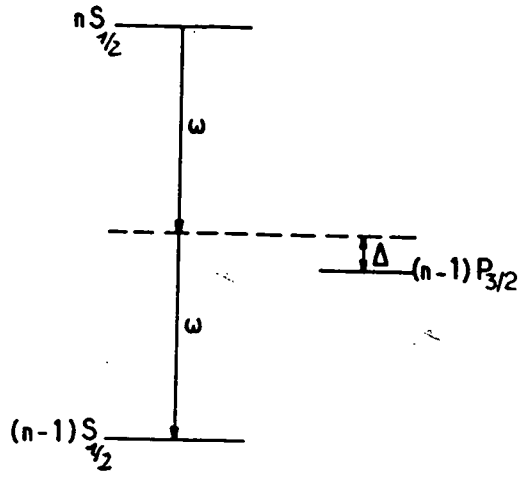
Nous allons maintenant décrire en détail la réalisation expérimentale du maser à deux photons.

1) - Le choix de la transition atomique

On a déjà signalé les propriétés exceptionnelles de couplage atome-champ dans les systèmes atomes de Rydberg-cavité : grande valeur du dipôle, longue durée de vie et fréquences des transitions favorables à de très bonnes cavités. Les niveaux très excités $S_{1/2}$ et $P_{3/2}$ des alcalins présentent en outre des situations particulièrement favorables à un processus d'émission dégénérée à deux photons.

Considérons les triangles de niveaux $|n,s\rangle$, $|n-1,s\rangle$,

a)


nS 1/2
ω
Δ
(n-1) P3/2
ω
(n-1) S 1/2

b)

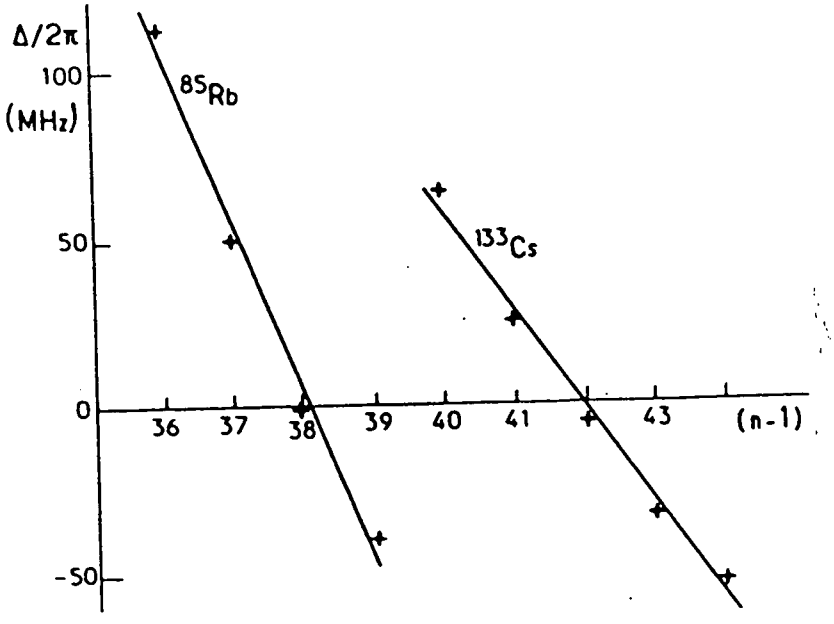

Δ/2π
100
(MHz)
85Rb
133Cs
50
0
-50
36
37
38
39
40
41
43
(n-1)

Figure I.2.

$|n-1,p\rangle$, (n étant le nombre quantique principal) (Fig. I.2.a) et, plus précisément, la variation en fonction de n du désaccord Δ du niveau p par rapport à l'énergie $Ef + \hbar\omega$ $Ee - \hbar\omega$ (Fig. I.2.b). La valeur de Δ dépend de la position relative des niveaux S et P et donc de la différence entre les défauts quantiques de ces deux séries. Pour les alcalins, cette différence vaut environ 0,5 ce qui place les niveaux P à proximité, en énergie, du milieu des deux états S voisins. Il y a en plus une lente variation des défauts quantiques avec n. Celle-ci a été mesurée très précisément dans des expériences de spectroscopie des états de Rydberg des alcalins [P. Goy et al. 1982 A, C. Fabre et al. 1980, P. Goy et al. 1982 B, D. Meschede et al. 1984, P. Goy et al. 1986]. On constate alors que, dans le cas du rubidium [D. Meschede 1984] et du césium, Δ change de signe en passant par une valeur très faible pour n de l'ordre de 40 (Fig. I.2.b). Ainsi, dans le rubidium, $\Delta/2\pi$ ne vaut que 0,4 MHz pour n 39 et 39 MHz pour n 40. Cette dernière valeur est, nous le verrons, la mieux adaptée à notre expérience. Le même phénomène se produit aussi dans les spectres du sodium et du potassium mais pour des valeurs de n beaucoup plus grandes, difficiles à exciter en pratique ($n \sim 60$) et qui, de toutes façons, correspondraient à des fréquences de transition beaucoup trop faibles pour permettre à la dimension des cavités de rester raisonnable (ν 1 GHz$\longrightarrow\lambda$ 30cm). Par contre, dans le cas du rubidium et du césium, les fréquences des transitions à deux photons sont de l'ordre de 100 GHz ($\lambda \sim 3$ mm) valeurs bien adaptées à des cavités supraconductrices de faibles dimensions.

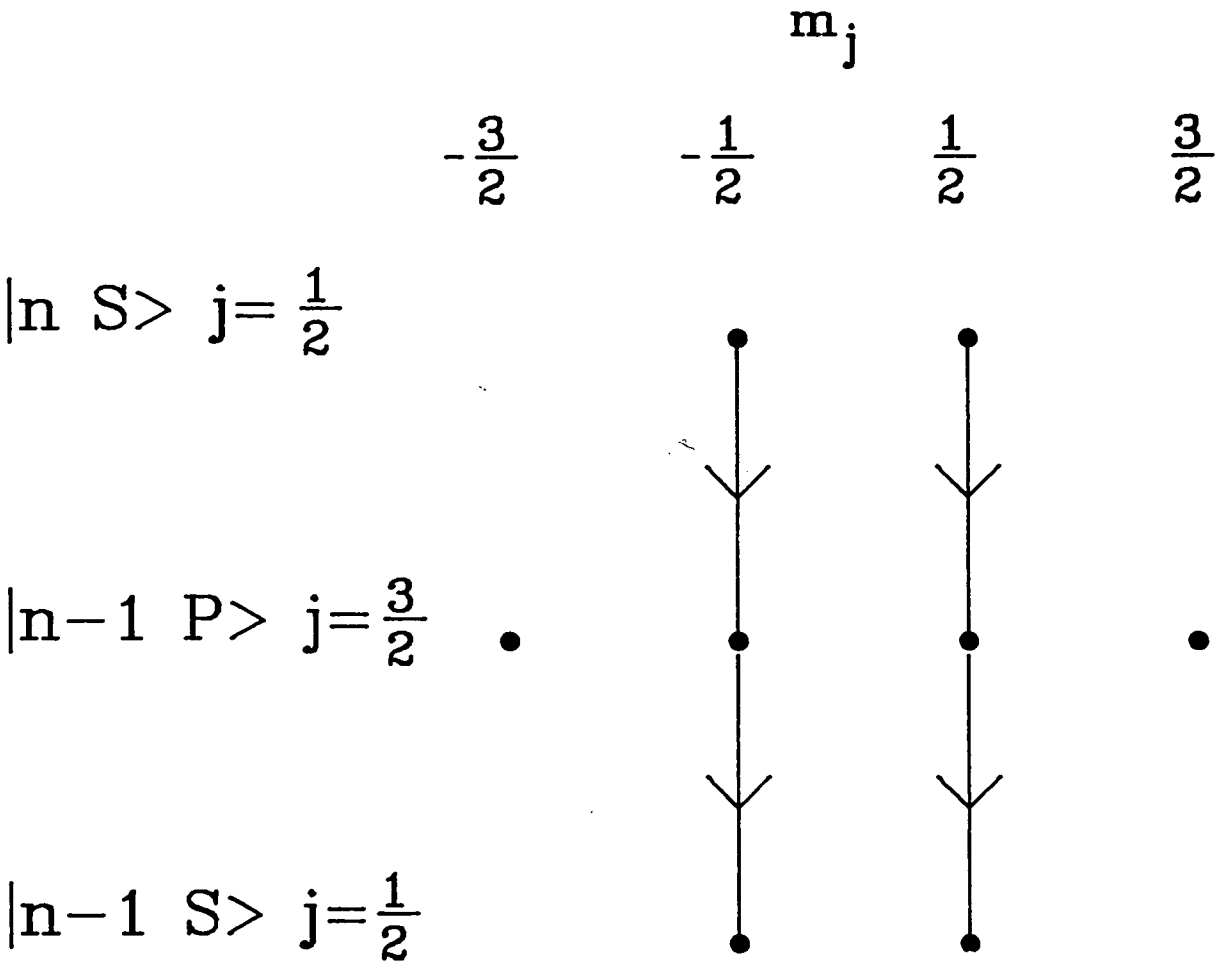
Le choix d'une petite valeur de Δ n'est pas la seule contrainte. Il faut en effet qu'en aucun cas les transitions à un photon $|n,s\rangle \longrightarrow |n-1,p\rangle$ ou $|n-1,p\rangle \longrightarrow |n-1,s\rangle$ ne puissent venir en résonance avec la cavité et entrer en compétition avec le véritable processus à deux photons. Le paramètre permettant de quantifier un mélange éventuel entre effets à un et deux photons est le rapport entre la largeur des transitions à un photon et Δ leur écart à résonance. Il existe en particulier dans la cavité des champs électriques inhomogènes ($\sim$ 0,2 V/cm) capables de déplacer quadratiquement et d'élargir notablement les transitions à 1 photon (typiquement 1,5 MHz pour une transition s $\longrightarrow$ p) : ceci nous oblige

à exclure les valeurs de Δ inférieures au MHz. Une autre cause possible d'élargissement et de déplacement est l'effet de la puissance du champ microonde dans la cavité. Les niveaux atomiques à considérer sont en effet les niveaux de l'atome habillé par le champ [C. Cohen-Tannoudji et al. 1977]. Les raies à un photon sont déplacées d'environ 100 kHz par photon. Cet effet est proportionnel à l'intensité du champ. Enfin, signalons que la largeur intrinsèque des raies dans la cavité, fixée par le temps d'interaction des atomes avec le champ, vaut 40 kHz. Elle est donc négligeable par rapport aux autres causes d'élargissement.

En résumé, les niveaux $40\ s_{1/2} - 39\ p_{3/2} - 39\ s_{1/2}$ du rubidium et $43\ s_{1/2} - 42\ p_{3/2} - 42\ s_{1/2}$ du césium où $\Delta/2\pi$ vaut respectivement 39 et 7,8 MHz nous apparaissent donc comme les meilleurs candidats pour le maser à deux photons.

Notons ici que ces systèmes atomiques sont dans notre expérience de véritables systèmes à trois niveaux, malgré la dégénérescence de chacun d'entre eux. Par exemple les états $|n,s\rangle$ sont dégénérés deux fois : $m_s \pm \frac{1}{2}$. Cependant, la polarisation du champ dans la cavité étant linéaire, seules les transitions π doivent être considérées lorsque la direction de quantification est choisie parallèle à cette direction (Fig. I.3). D'autre part, nous n'avons pas à considérer le niveau $p_{1/2}$ car, à cause de la structure fine, la valeur de Δ qui lui correspond est supérieure à 1 GHz. Enfin, la structure hyperfine des niveaux ne joue aucun rôle car elle n'est pas résolue dans l'expérience (16 kHz pour la transition à deux photons 40s $\longrightarrow$ 39s du Rubidium). Nous avons donc deux systèmes à trois niveaux identiques ($m_s \pm 1/2$) et découplés auxquels les calculs présentés par la suite s'appliquent parfaitement.

Notre préférence s'est portée sur le rubidium pour une raison pratique importante : l'excitation continue de ses états de Rydberg est réalisable de façon "simple" et peu coûteuse par des sources solides uniquement : trois diodes laser. Ce point (détaillé au paragraphe 3), donne un avantage considérable au rubidium par rapport au césium. Ce dernier alcalin nécessiterait un laser à



Couplages intervenant dans notre système lorsque la polarisation du champ est lineaire et paralléle à l'axe de quantification

Figure I. 3

colorant, non seulement plus coûteux, mais aussi beaucoup plus difficile à mettre en oeuvre en continu.

Nous avons donc été amenés à choisir la transition à deux photons 40 $s_{1/2} \longrightarrow 39\ s_{1/2}$ du rubidium 85. Les éléments de matrices dipolaires valent alors :

$$d_{ei} = \langle 40s_{1/2} | d | 39p_{3/2} \rangle = 1443 \text{ u.a}$$
$$d_{if} = \langle 39p_{3/2} | d | 39s_{1/2} \rangle = 1479 \text{ u.a} \qquad (1)$$

La fréquence de la transition à deux photons : 68,416 GHz, correspond à une longueur d'onde de 4,1 mm. Nous allons maintenant montrer qu'à cette fréquence il est possible de réaliser des cavités résonnantes de très haute finesse.

2) - <u>La cavité microonde</u>

Elle doit avoir des caractéristiques exceptionnelles : très haute finesse dans un mode presque fondamental et possibilité d'accord. Elle apparaît comme l'élément essentiel de l'expérience. Sa réalisation a représenté un important travail de conception puis de mise en oeuvre de toute une série de technologies très délicates : usinage de précision, polissage chimique, soudure par faisceau électronique, recuit à haute température sous ultra-vide et utilisation intensive d'un banc d'analyse millimétrique pour la caractérisation (mesure directe par transmission microonde de la fréquence de résonance et du facteur de qualité).

Les objectifs étaient les suivants : d'abord obtenir un facteur de qualité proche de 2.10^8, valeur prévue par la théorie B.C.S. pour du niobium supraconducteur à 2 Kelvins. Ensuite, être capable d'accorder avec une très grande précision cette cavité, dont la largeur de résonance ne vaut que 500 Hz, sur une raie atomique de largeur 40 kHz. Ceci nécessite une précision dans le contrôle des dimensions géométriques du résonateur meilleure que 10 Å.

Nous allons d'abord préciser l'origine de la valeur limite du facteur de qualité. Nous donnerons pour ensuite une description précise de la cavité réalisée et des ses performances. Les détails techniques de la réalisation, de l'accord et de l'appareillage d'analyse des résonances sont donnés en appendice.

a) - Le facteur de qualité. Limitations

La théorie B.C.S. [J. Bardeen et al. 1957], prévoit une valeur finie de Q [A. Abrikosov et al. 1958] pour une cavité supraconductrice.

A fréquence non nulle (ici ν 68 GHz) la résistance de surface théorique R_{BCS} d'un supraconducteur est donnée par l'expression : [Klein 1985]

$$R_{BCS} = A\ \nu^{1,3}\ e^{-(\Delta_0/KT_c)(T_c/T)} \qquad (2)$$

où ν est la fréquence, Δ_0 le gap du supraconducteur, T_c la température critique, T la température absolue, A une constante. Pour le niobium pur on a :

$$T_c = 9,2\ K, \qquad \frac{\Delta_0}{KT_c} = 1,854, \qquad A = 3,7\ 10^{-21}\ \Omega.\ T^{1,3} \qquad (3)$$

On constate ainsi que pour $\nu \neq 0$, R_{BCS} n'est nulle qu'à température nulle. Ceci constitue une limitation fondamentale sur le facteur de qualité. Il est en effet lié à R, la résistance de surface du matériau, par la relation :

$$Q = \frac{G}{R} \qquad (4)$$

où G, homogène à une résistance, ne dépend que de la géométrie du mode considéré (pour notre cavité G 1010 Ω). A 2K la valeur BCS de Q vaut 2.10^8.

Cette valeur spectaculaire suppose cependant que le supraconducteur est parfait et que la cavité est sans couplage avec l'extérieur. Dans la pratique, aucune de ces deux hypothèses n'est vérifiée.

Les imperfections du matériau ont deux origines : impuretés résiduelles et défauts de cristallisation (dislocations, contacts entre cristaux différents). Tous ces défauts limitent le libre parcours moyen des électrons dans le supraconducteur, paramètre qui détermine la résistance résiduelle R du matériau à température nulle et donc la limitation pratique du facteur de qualité [N. Klein 1985, J. Halbritter 1977, 1978, 1984].

Pour minimiser ces défauts, il nous faut prendre un maximum de précautions : utiliser du niobium pur, polir chimiquement la surface du métal pour éliminer une couche d'une épaisseur de l'ordre de 100 μm dans laquelle la structure cristalline est détruite pendant l'usinage. Il est aussi nécessaire de recuire sous ultra-vide la cavité réalisée pour dégazer les impuretés piégées au voisinage de sa surface (oxygène, carbone) et surtout pour recristalliser lentement le métal et obtenir des cristaux les plus gros possibles ($\sim$ 1 à 2 mm), visibles à l'oeil (ils diffusent la lumière de façon légèrement différente pour des orientations cristallines différentes). Précisons enfin que la cavité devant être usinée en deux parties puis soudée, cette soudure ne doit pas affecter la qualité du métal. La seule technique convenable est la soudure par faisceau électronique sous vide car elle est très propre et utilisable sur un matériau aussi réfractaire que le niobium (T_F 2800°C).

Le second effet à prendre en compte pour la valeur limite du facteur de qualité est lié au couplage de la cavité avec l'extérieur par deux orifices. Ceux-ci ont deux fonctions : d'une part, il faut un passage pour le jet atomique qui doit traverser la cavité, d'autre part, il est hors de question de fabriquer une cavité accordée sans contrôle direct de sa fréquence de résonance. Les tolérances d'usinage correspondent en effet à une dispersion en fréquence de l'ordre de quelques centaines de MHz. Cette valeur,

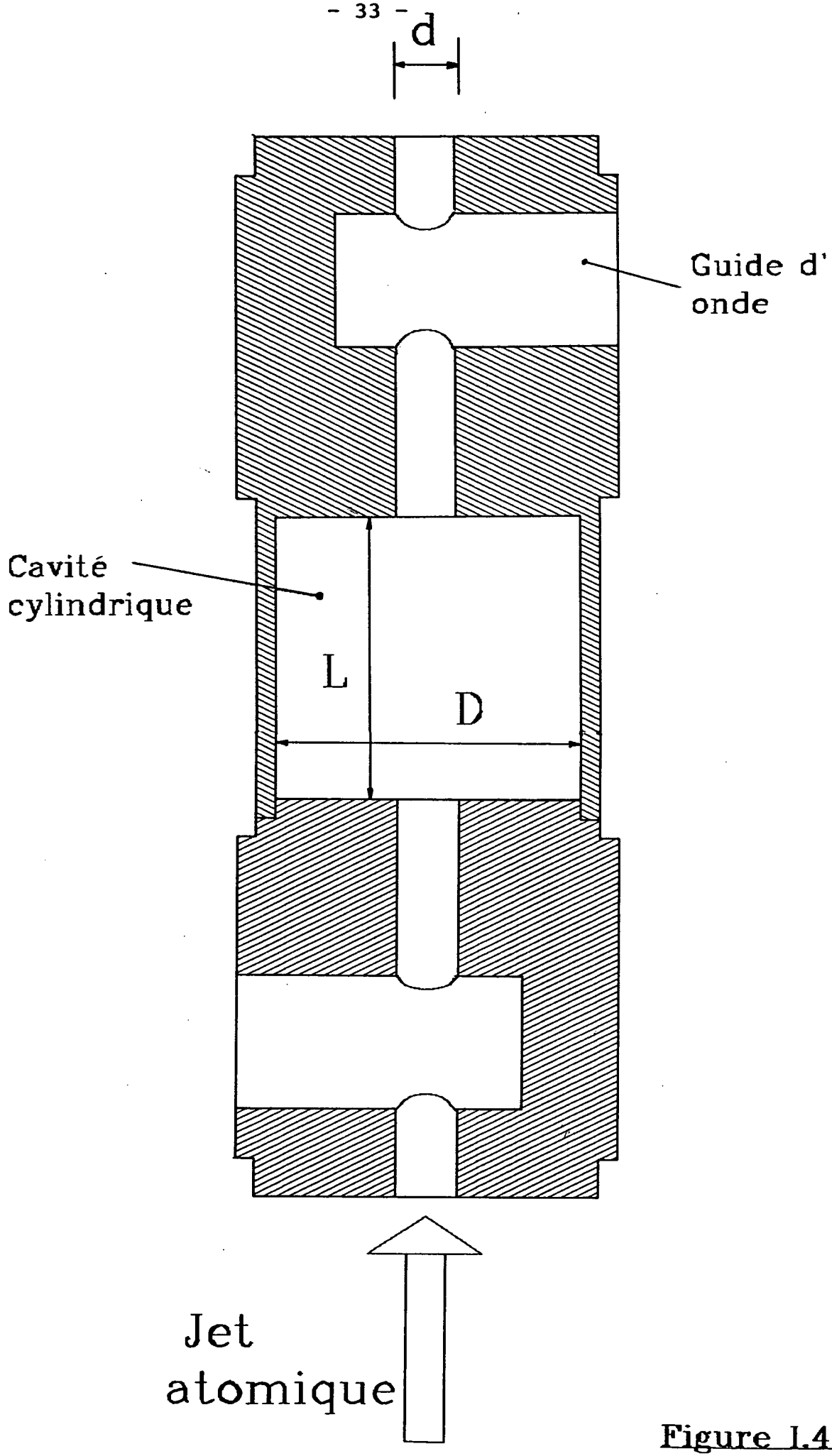


Figure I.4.

comparée aux 40 kHz de la raie atomique, conduirait à la réalisation de quelques milliers de cavités pour avoir statistiquement une chance sur deux d'en avoir une à la bonne fréquence, mais sans même savoir laquelle ! Nous devons donc pouvoir mesurer la fréquence de résonance de nos cavités. Elles sont pour cela couplées à l'extérieur. Le coefficient de transmission à résonance est T. Dans le cas où l'entrée et la sortie de la cavité sont symétriques, le facteur de qualité est donné par la formule [N. Klein 1985] :

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_0} + \frac{2}{Q_1} \qquad (5)$$

où Q_0 est la valeur du facteur de qualité correspondant à la résistance résiduelle du supraconducteur (formule 4) et Q_1 est une constante liée à la transmission par la relation :

$$T = 4 \left(\frac{Q}{Q_1}\right)^2 \qquad (6)$$

ce qui donne :

$$Q = Q_0 (1-\sqrt{T}) . \qquad (7)$$

La valeur de T choisie devra donc être la plus faible possible tout en restant compatible avec la sensibilité de notre système microonde d'analyse par transmission (Appendice A).

b) - <u>Description de la cavité</u>

Il s'agit d'une cavité cylindrique de diamètre D et de longueur L présentée Fig. (I.4) [M. Klein 1985, G. Müller 1983]. La forme cylindrique a été choisie car la structure de mode est alors entièrement calculable.

Les modes, qui sont de deux types ; transverse électrique (TE) ou transverse magnétique (TM), sont caractérisés par trois indices entiers m, n et p :

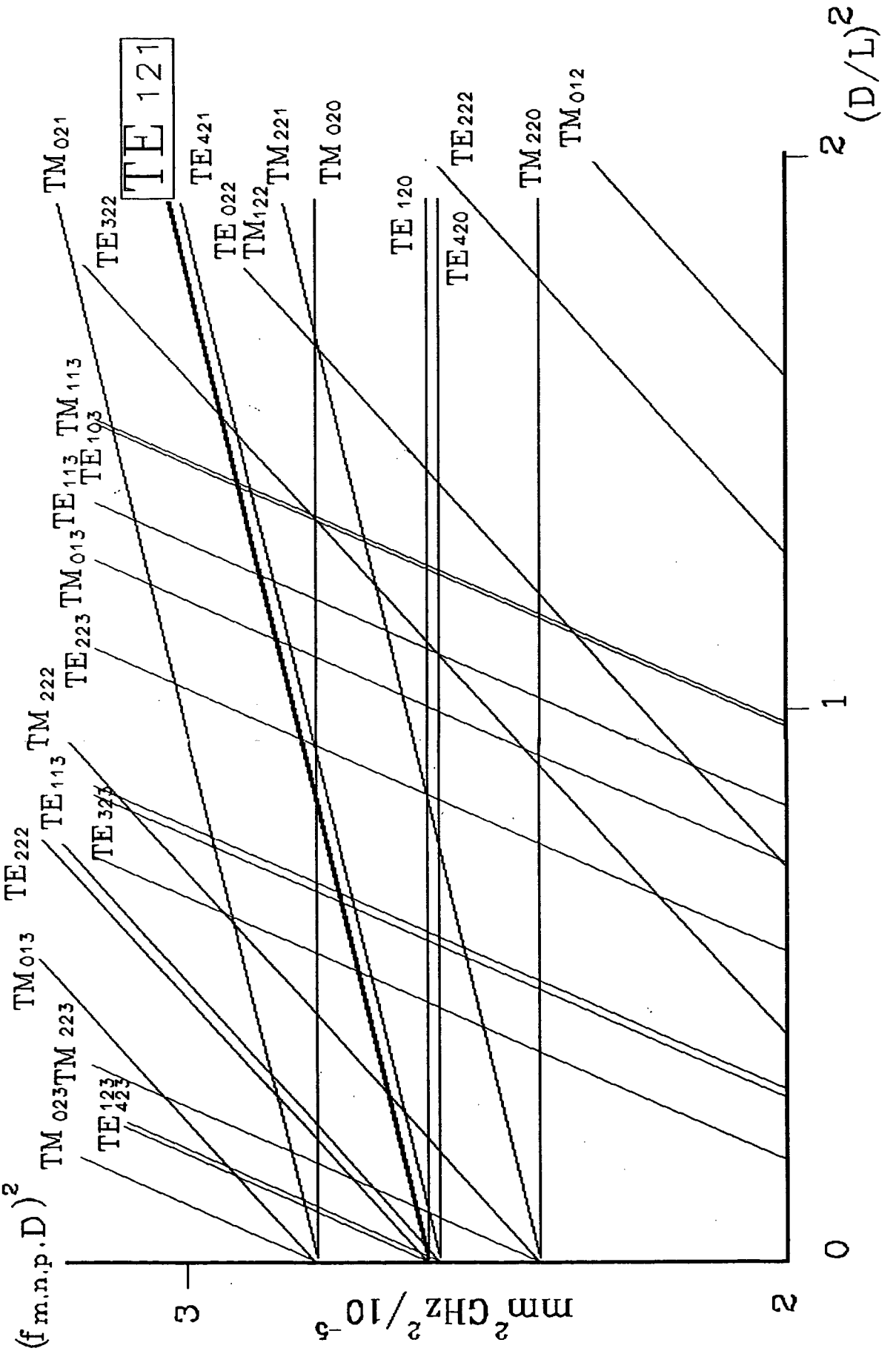

TE 121
TM 021
TE 322
TE 421
TE 022
TM 122
TM 221
TM 020
TE 120
TE 420
TE 222
TM 220
TM 012
TM 113
TE 103
TE 113
TM 013
TE 223
TM 222
TE 113
TE 323
TE 222
TM 013
TM 223
TM 023
TE 123
423
(f m,n,p.D)2
mm2 GHz2/10-5
3
2
0
1
2
(D/L)2

Figure I.5.

+ $m \geqslant 0$ nombre d'oscillations du champ dans la direction azimutale φ.
+ $n \geqslant 1$ nombre de maxima du champ dans la direction radiale n.
+ $p \geqslant 1$ (TE) $\geqslant 0$ (TM) nombre de demi-oscillations du champ le long de l'axe de la cavité.

Les fréquences de résonance sont :

$$f_{mnp} = \frac{c}{2}\sqrt{\left(\frac{x_{mn}}{\pi R}\right)^2 + \left(\frac{p}{L}\right)^2} \qquad (8)$$

c est la vitesse de la lumière et $R = \frac{D}{2}$.

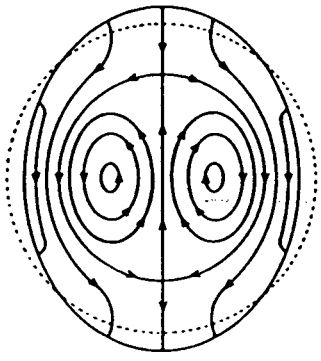
x_{mn} est le $n^{ième}$ zéro de la fonction de Bessel J_m (resp J'_m, dérivée de J_m) pour les modes TM (resp TE).

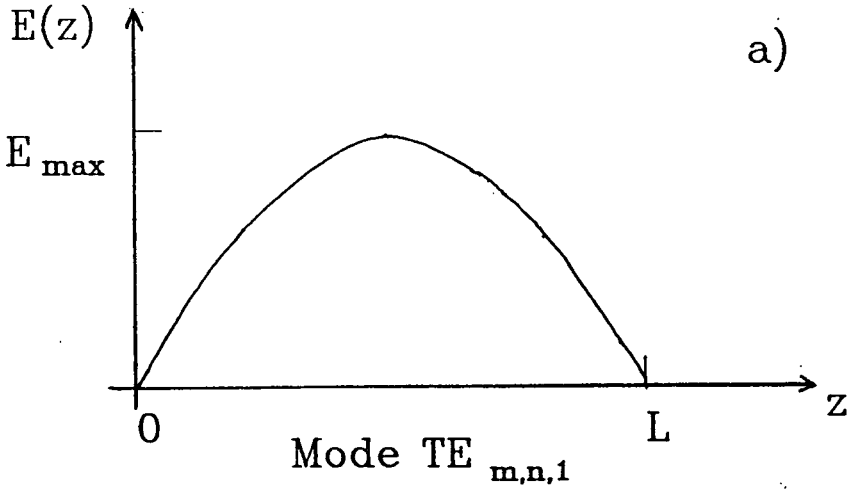
La structure des champs électrique $\vec{E}$ et magnétique $\vec{H}$ est la suivante : (coordonnées cylindriques)

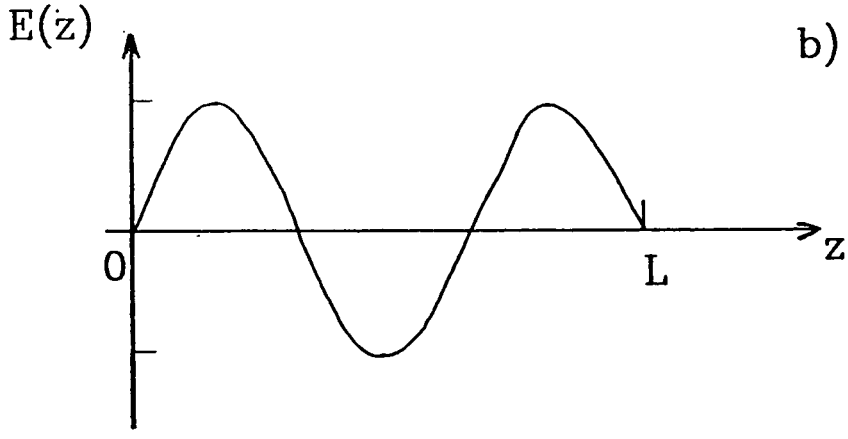
+ Mode TE_{mnp}

$$\begin{aligned}
H_r &= H_0\, a && J'_m(x_{mn}\tfrac{r}{R}) \cos(m\varphi) \cos(p\pi\tfrac{z}{L}) \\
H_\varphi &= -H_0\, ab && J_m(\text{"}) \sin(\text{"}) \cos(\text{"}) \\
H_z &= H_0 && J_m(\text{"}) \cos(\text{"}) \sin(\text{"}) \\
E_r &= iZ_0 H_0 \sqrt{1+a^2}\; b && J_m(\text{"}) \sin(\text{"}) \sin(\text{"}) \\
E_\varphi &= iZ_0 H_0 \sqrt{1+a^2} && J'_m(\text{"}) \cos(\text{"}) \sin(\text{"}) \\
E_z &= 0
\end{aligned} \qquad (9)$$

+ Mode TM_{mnp}







Mode TE $_{m,n,3}$

Figure I.6.

$$
\begin{aligned}
E_r &= -E_0\, a && J'_m(x_{mn}\frac{r}{R})\cos(m\varphi)\sin(p\pi\frac{z}{L})\\
E_\varphi &= E_0\, a\, b && J_m(\ "\ )\sin(")\sin(\ "\ )\\
E_z &= E_0 && J_m(\ "\ )\cos(")\cos(\ "\ )\\
H_r &= -iE_0/Z_0\sqrt{1+a^2}\ b && J_m(\ "\ )\sin(")\cos(\ "\ )\\
H_\varphi &= -iE_0/Z_0\sqrt{1+a^2} && J'_m(\ "\ )\cos(")\cos(\ "\ )\\
H_z &= 0
\end{aligned}
\qquad (9')
$$

avec $a = \dfrac{p\pi R}{x_{mn} L}$, $b = \dfrac{mR}{x_{mn} r}$ et $z_0 = \sqrt{\dfrac{\mu_0}{\varepsilon_0}}$.

La figure (I.5) présente les valeurs de $f_{m,n,p}$ en fonction du paramètre D/L qui reste libre quand on a fixé une fréquence de résonance. Le choix d'un mode doit répondre à plusieurs exigences : la valeur du champ électrique sur l'axe doit être importante puisque c'est dans cette zone que se fait l'interaction atome-champ. Il faut aussi que le mode choisi ait un bon facteur de qualité et soit le plus loin possible de ses plus proches voisins, ce qui fixe la valeur de D/L.

Notre préférence s'est portée sur le mode transverse électrique TE_{121} . Les lignes de champ électrique dans un plan orthogonal à l'axe ainsi que le profil du champ $\vec{E}$ le long de l'axe sont représentés sur la Fig. (I.6.a). On constate que la polarisation de $\vec{E}$ est linéaire, transverse par rapport à l'axe, et que l'amplitude est maximale sur l'axe avec une variation en arche de sinusoïde, de sorte que la phase du champ vue par les atomes reste la même pendant toute l'interaction. C'est un point important car s'il n'en était pas ainsi (Fig. I.6.b), (modes TE_{12n} n>1 par exemple) on aurait une variation sur l'axe en $\sin(n\pi\, z/L)$ qui correspondrait à un changement de phase du champ chaque fois que l'on passe d'une arche à la suivante. Ceci aurait un effet néfaste sur le gain atomique, même avec un très fort couplage, puisque

à chaque inversion de la phase du champ correspond une inversion du sens de l'évolution des atomes. Ainsi l'oscillation de Rabi entamée sur une arche serait annulée par l'interaction avec l'arche suivante et dans le cas où n est pair, on aurait à la sortie de la cavité des atomes exactement dans le même état qu'à l'entrée et donc un gain nul. Pour n impair, l'effet reviendrait à diviser le temps d'interaction par n pour le calcul de l'angle de Rabi.

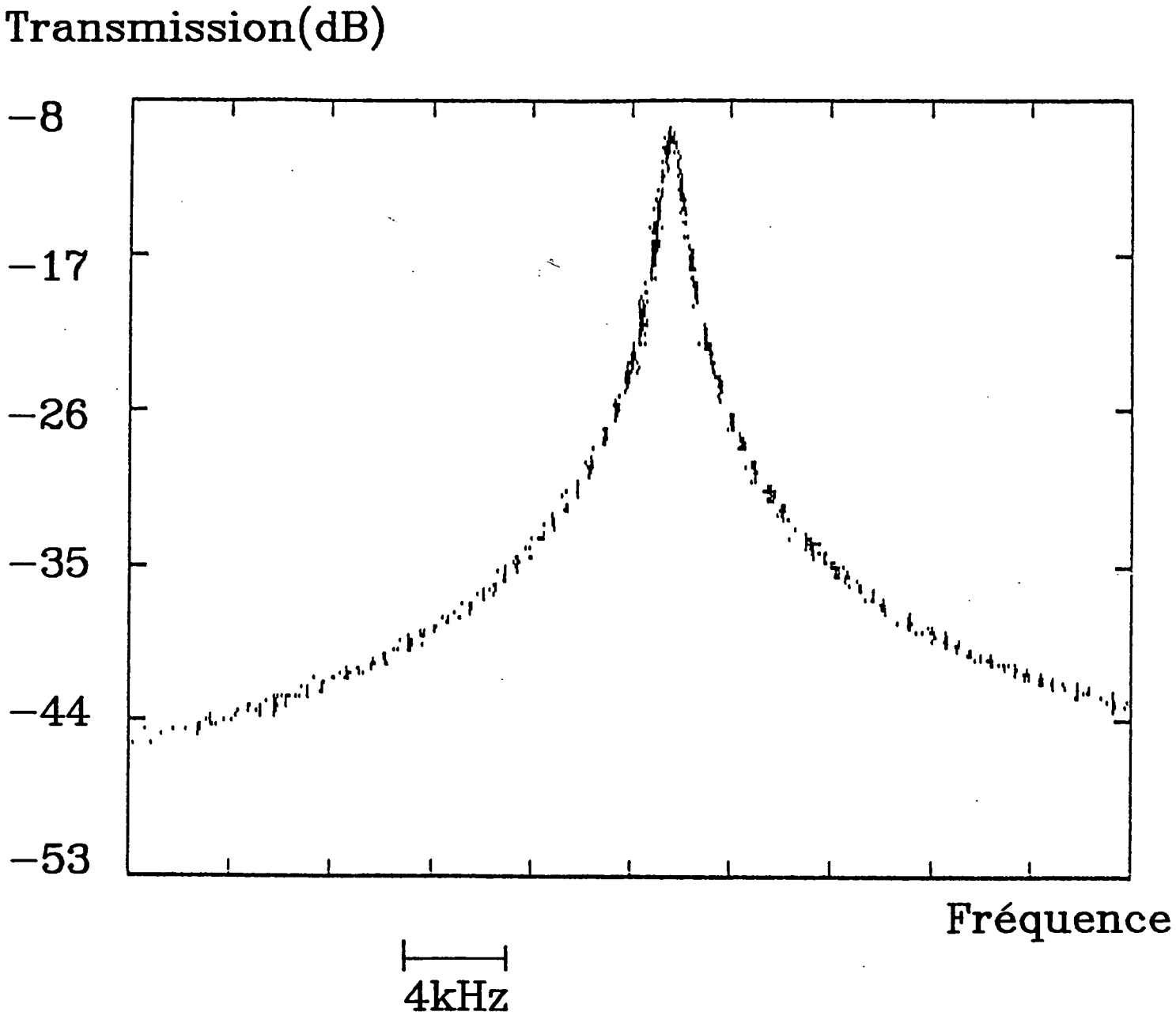
Une fois le choix de TE_{121} arrêté, il reste à choisir D/L. Nous devons alors tenir compte à la fois du fait que le facteur géométrique G qui intervenait dans la valeur de Q_0 dépend de D/L (il est maximal pour D/L 1), et de la nécessité d'éloigner le plus possible la fréquence des autres modes de la cavité par rapport à celle de celui qui nous intéresse. En fait la fig. (I.5) est insuffisante pour l'optimisation de ce paramètre car nous n'avons pas rigoureusement une cavité close cylindrique : les trous de couplage modifient légèrement la structure des modes. Ces modifications peuvent être calculées numériquement [U. Laustroer et al. 1987], ce qui nous a conduit au choix (D/L) 1,03. Il existe toutefois un mode très voisin quel que soit D/L, c'est le mode TE_{421} mais nous pouvons l'ignorer car, son champ électrique étant nul sur l'axe, il n'est pas couplé aux atomes.

Finalement, on a alors :

$$\begin{aligned} D &= 7,75 \text{ mm} \\ L &= 7,5 \text{ mm} \end{aligned} \qquad (10)$$

Le couplage avec l'extérieur est assuré par deux trous cylindriques (Fig. I.4) dans l'axe de la cavité de diamètre 1,6 mm et de longueur 5 mm dans lesquels débouchent deux guides d'ondes reliés au système de mesure par transmission. Le champ dans la cavité est couplé aux guides d'onde par une onde évanescente à travers les trous de 1,6 mm.

On a alors un volume effectif du mode $\mathcal{V}$ 10 mm^3 ce qui nous donne $\mathcal{E}_0$ 1,55 10^{-2} V/m pour un photon dans la cavité.



Résonance d'une cavite supraconductrice
(f~68.416 GHz)

Figure I.7.

La meilleure valeur de Q obtenue à T 1,7 K est 2.10^8. La Fig. (I.7) présente une résonance de cavité. Cette mesure a été faite à l'aide d'un analyseur scalaire de réseau pouvant couvrir la bande très large 16 - 350 GHz. Ce système original [P. Goy et al. 1988] fonctionne par génération et détection harmonique avec un rang multiplicateur n que l'on peut choisir de n 2 à n 21, ce qui permet de couvrir toutes les fréquences millimétriques en n'utilisant comme source primaire que des générateurs centimétriques (sources yig) faciles à mesurer et à stabiliser en fréquence. Pour la fréquence de 68 GHz on utilise l'harmonique n 6. La dynamique est de 80 dB avec une largeur instrumentale mesurée de 200 Hz quand on utilise un stabilisateur bande X Microwave Systems MOS 3106.

c) - Accord de la cavité

Rappelons que le but est d'accorder une résonance large de 500 Hz avec une précision meilleure que 40 kHz (largeur de la raie atomique). L'usinage et la soudure ne permettent pas de se rapprocher en moyenne à moins de quelques centaines de MHz de la résonance. Il nous reste alors deux moyens pour réaliser l'accord : l'attaque chimique contrôlée, après soudure de la cavité, ou la déformation mécanique de ses parois (il est exclu d'atteindre des facteurs de qualité de 10^8 pour un mode d'ordre très peu élevé avec une cavité constituée de pièces séparées qu'il suffirait de déplacer l'une par rapport à l'autre pour réaliser l'accord). En pratique, nous devons avoir successivement recours à ces deux méthodes. L'avantage de la chimie est qu'elle respecte la géométrie cylindrique de la cavité. La seule limite est qu'il ne faut pas dissoudre complètement les parois très minces (0,5 mm). La vitesse d'attaque est facilement contrôlable et la précision que l'on peut atteindre ainsi est de l'ordre du MHz. L'effet de ces attaques étant un agrandissement de la cavité, on obtient une diminution de la fréquence de résonance. Nous devons utiliser en dernier lieu une méthode de déformation élastique non seulement pour pouvoir atteindre la précision souhaitée mais aussi parce que l'accord final ne peut être réalisé que lorsque toute l'expérience est en

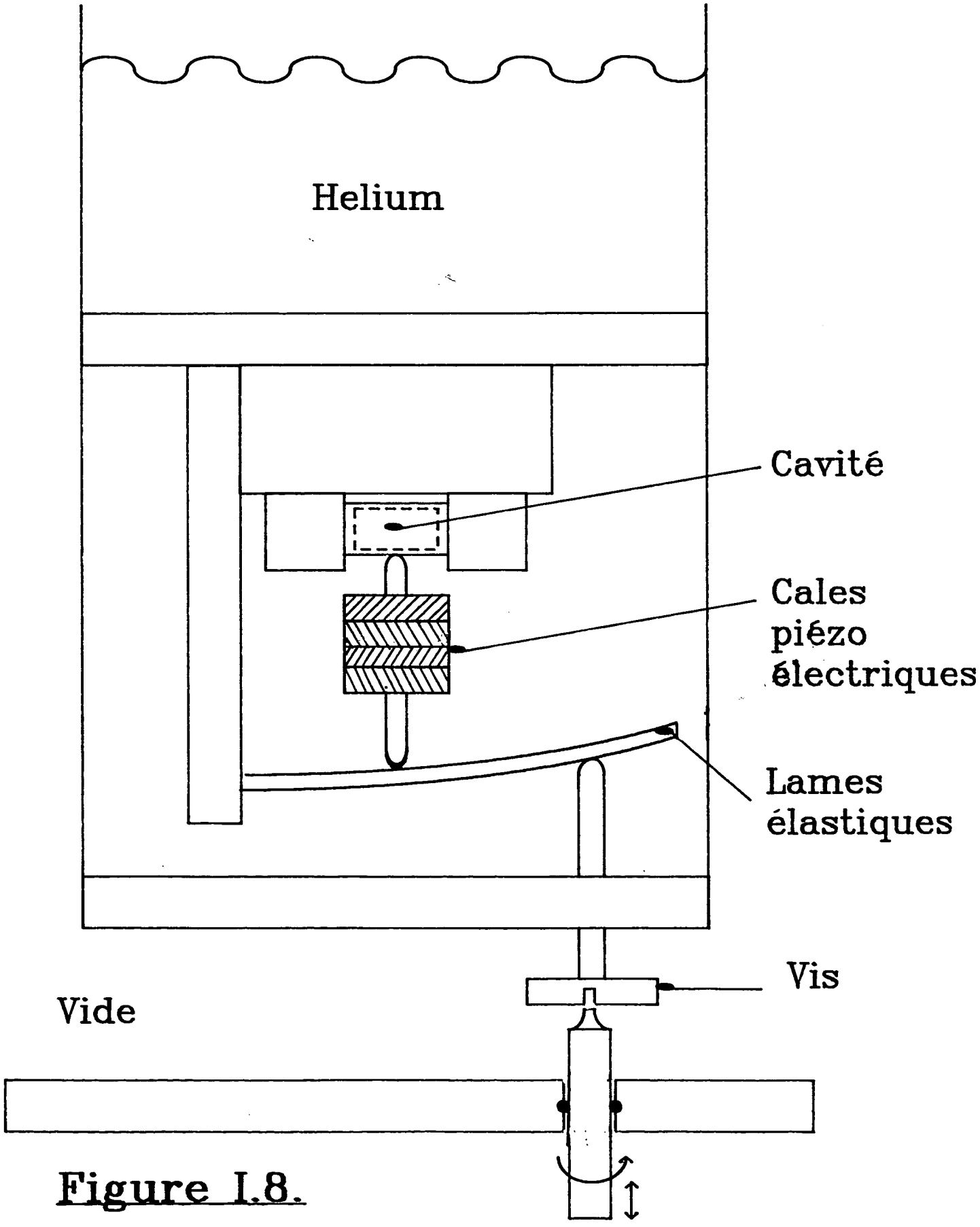

Helium
Cavité
Cales
piézo
électriques
Lames
élastiques
Vis
Vide

Figure I.8.

fonctionnement. La raison en est qu'un simple montage et démontage sur le dispositif expérimental peut déformer légèrement la cavité ce qui suffit à déplacer sa résonance de quelques MHz. Le deuxième avantage essentiel de la déformation élastique est sa réversibilité qui nous permet de réaccorder la cavité à volonté ainsi que de balayer systématiquement la raie du maser. Grâce à l'utilisation de vis micrométriques actionnées à l'intérieur même du cryostat, de lames de bronze déformables et de cales piézoélectriques (Fig. I.8) nous avons pu atteindre une précision d'accord excellente, de l'ordre de 100 Hz, avec une possibilité de balayage continu sur une largeur de 100 kHz par simple réglage d'une tension. La stabilité de tout ce système est excellente : la dérive est inférieure à 1 kHz/heure. La seule limitation est la valeur de la plage d'accord réversible ($\sim$ 50 à 100 MHz) trop faible pour que nous puissions utiliser cette méthode seule. Une préattaque chimique reste donc nécessaire. Cependant, cette gamme est amplement suffisante pendant l'expérience puisqu'elle nous permet même de nous accorder sur la transition voisine à 1 photon $39\ p_{3/2} \longrightarrow 39\ s_{1/2}$ qui est à 39 MHz au-dessous de la raie à deux photons.

Pour bien comprendre la phase finale de l'accord, il est nécessaire de regarder d'un peu plus près dans quel sens la déformation agit. On ne peut considérer que l'effet de l'écrasement soit simplement une diminution du volume de la cavité. En particulier, la déformation brise sa symétrie cylindrique puisque nous exerçons une pression latérale en un point et nous obtenons alors une forme ovale (Fig. I.9). La polarisation du mode que nous considérons est rectiligne, et dans un cylindre parfait les fréquences de résonance correspondant à deux polarisations orthogonales sont dégénérées. Cette dégénérescence est levée lorsqu'on déforme le cylindre. On peut calculer par le théorème de Slater le déplacement des deux modes propres qui apparaissent maintenant :

$$\frac{\Delta f}{f} = \frac{1}{4W} \int_{\Delta V} (\mu_0 H^2 - \varepsilon_0 E^2)\, dV \qquad (11)$$

ΔV est la diminution de volume, supposée petite, par rapport à un cylindre parfait (Fig. I. 9). W est l'énergie totale du champ. E et

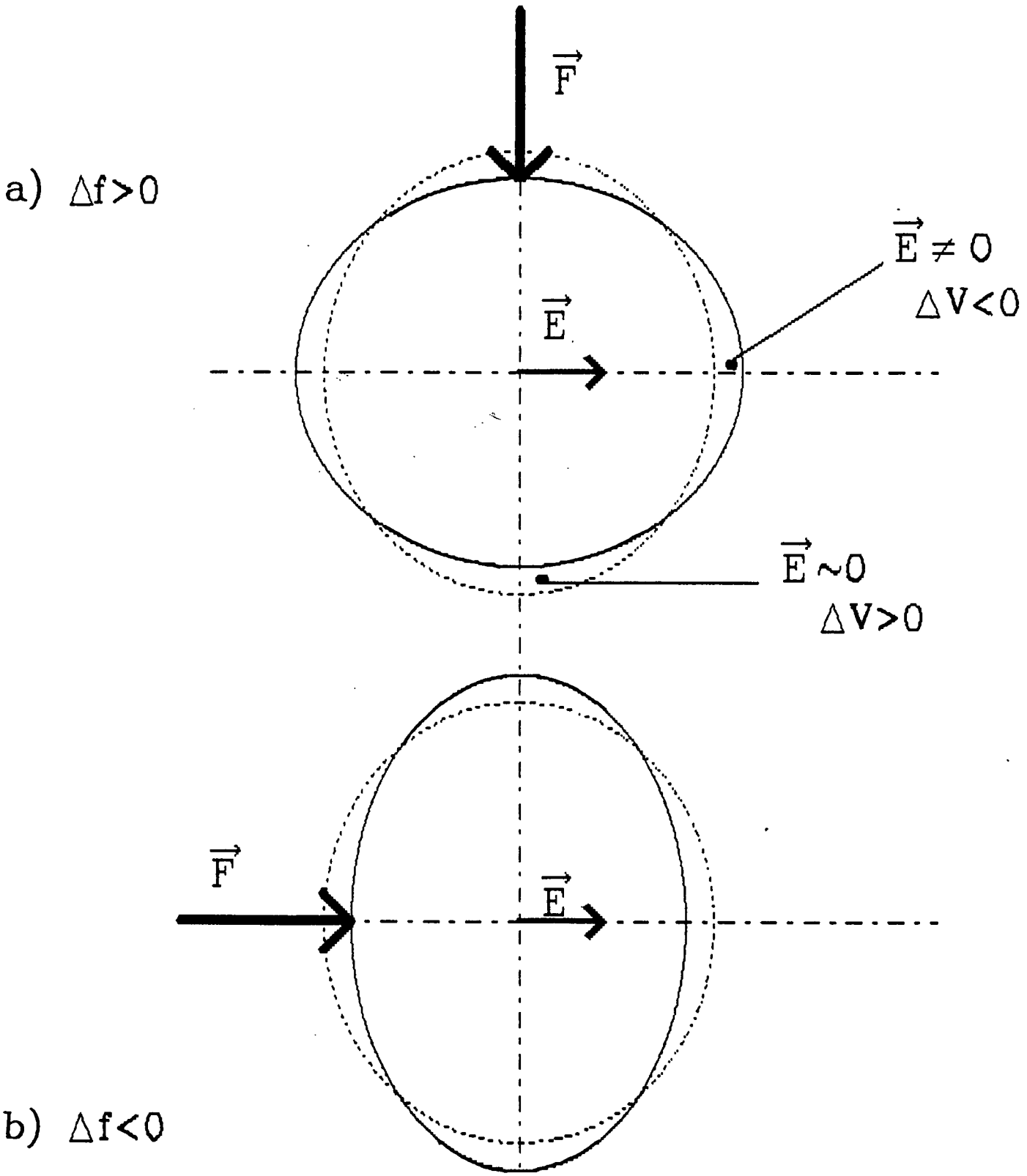


Figure I. 9.

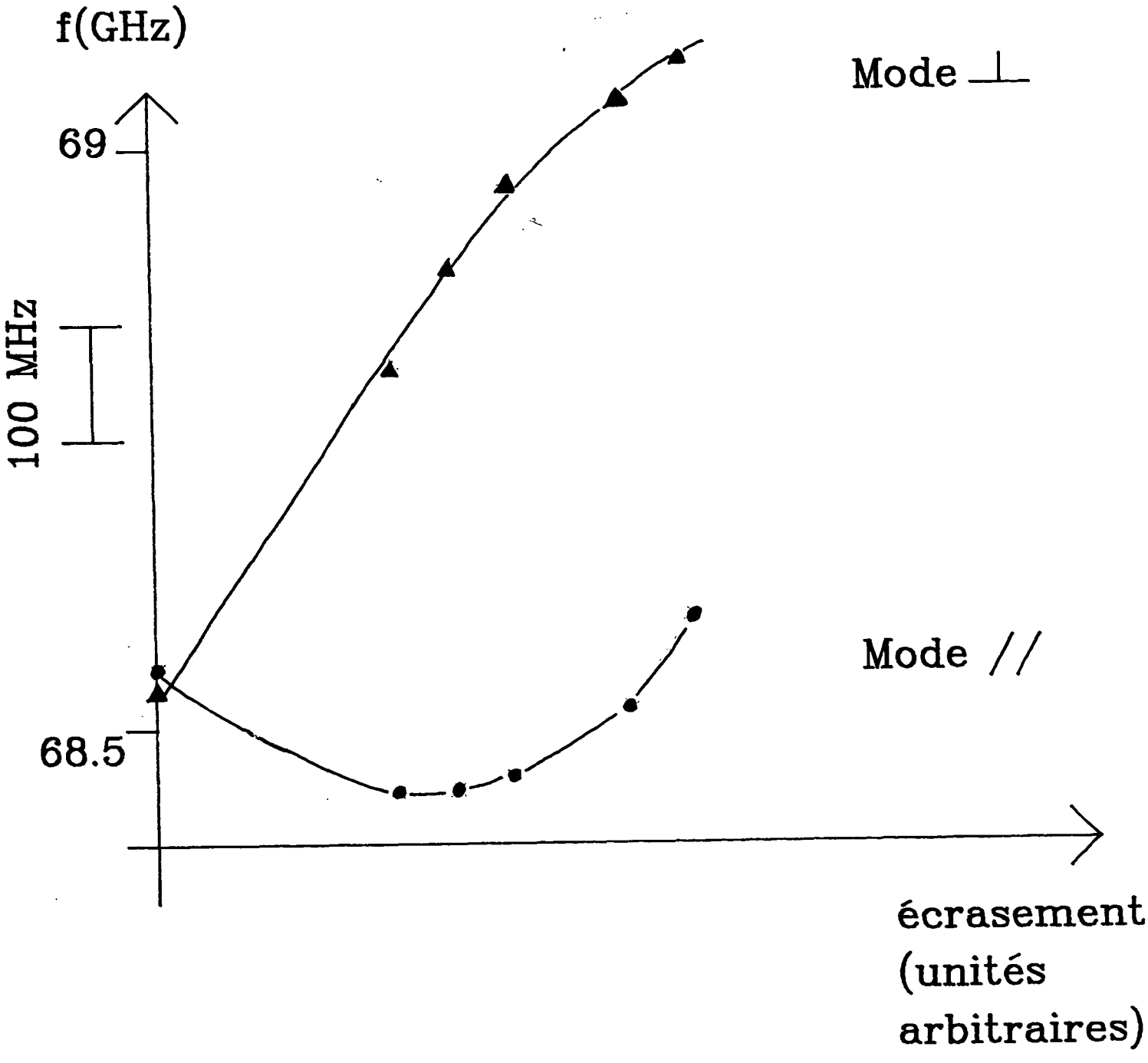

f(GHz)
69
100 MHz
68.5
Mode ⊥
Mode //
écrasement
(unités
arbitraires)

Figure I.10.

H sont les valeurs des champs électrique et magnétique dans la cavité non déformée. Le fait important est que le signe de Δf dépend de la position de la zone de déformation par rapport à la localisation de $\vec{E}$ et $\vec{H}$ dans la cavité et donc de la polarisation du mode considéré. Une des polarisations propres est dans la direction du point d'appui, l'autre est perpendiculaire à cette direction. On peut prévoir que, dans ce dernier cas, nous avons une augmentation de la fréquence de résonance puisqu'à la surface de la cavité, le champ électrique est localisé principalement dans la direction de sa polarisation (Fig. I.9.a). Cependant ceci n'est valable que pour les faibles déformations. Au-delà la diminution globale de volume devient prépondérante et les deux modes évoluent vers les plus hautes fréquences. Ces variations mesurées en fonction de la déformation sur des prototypes de cavités sont présentées en figure (I.10). Il apparaît que la gamme d'accord est plus large pour le mode qui se déplace vers les hautes fréquences (polarisation perpendiculaire à la force de déformation), et que les fréquences des deux modes s'écartent de la valeur initiale sur une plage d'accord qui va jusqu'à 100 MHz. Nous avons choisi la polarisation du cas a et fait en sorte qu'elle soit la seule à être notablement couplée à l'extérieur en raison de la configuration de polarisation des guides d'onde. Pour la suite, il faut cependant garder à l'esprit l'existence de l'autre mode qui est aussi couplé aux atomes et qui ne doit pas venir accidentellement à résonance avec les transitions à un photon s $\longrightarrow$ p et p $\longrightarrow$ s. Le premier cas (40 s $\longrightarrow$ 39 p) est en fait exclu car sa fréquence est 39 MHz au-dessus de la fréquence à deux photons, qui est elle-même au-dessus de celle du mode caché.

Finalement, la procédure complète d'accord est la suivante : nous réalisons d'abord une cavité "trop petite", dont la fréquence de résonance est trop grande de quelques centaines de MHz. Nous agrandissons ensuite cette cavité progressivement par attaque chimique en contrôlant périodiquement (par une mesure de

transmission à basse température)(*) l'évolution de la fréquence de résonance jusqu'à arriver à une cavité légèrement trop grande (résonnant 30 à 40 MHz en-dessous du but). On pratique enfin le recuit à haute température qui ne modifie pas l'accord. La cavité est maintenant prête pour le maser. L'accord fin par déformation est réalisé en dernier lieu, une étape supplémentaire d'écrasement non réversible réalisé à température ambiante peut être (et a été) utilisée au cas où l'attaque chimique serait allée un peu trop loin.

Nous constatons finalement que la technique de réalisation des cavités donne entière satisfaction. Ce résultat a été rendu possible par une collaboration avec la division EF du CERN qui nous a fait bénéficier de sa maîtrise des technologies nécessaires à l'utilisation du niobium : il y a actuellement un gros effort pour que les cavités accélératrices des grands instruments de la physique des particules de demain soient des cavités supraconductrices. En effet, on peut atteindre ainsi des champs accélérateurs plus intenses (grâce aux surtensions très grandes) avec des sources micro-ondes moins gourmandes en énergie qu'avec une cavité classique en cuivre (puisque les pertes ohmiques sont beaucoup plus faibles). Cependant, il ne s'agissait pas d'une simple transposition de la technologie des accélérateurs à nos besoins, du fait d'exigences tout à fait différentes à des fréquences tout à fait différentes ($\sim$ 350 MHz pour les accélérateurs).

(*) Une mesure directe de la transmission de la cavité à température ambiante est impossible : le couplage est beaucoup trop faible (T -130 dB) du fait de la faible valeur du facteur de qualité (R 3500, formules 6 et 7) d'une cavité non supraconductrice.

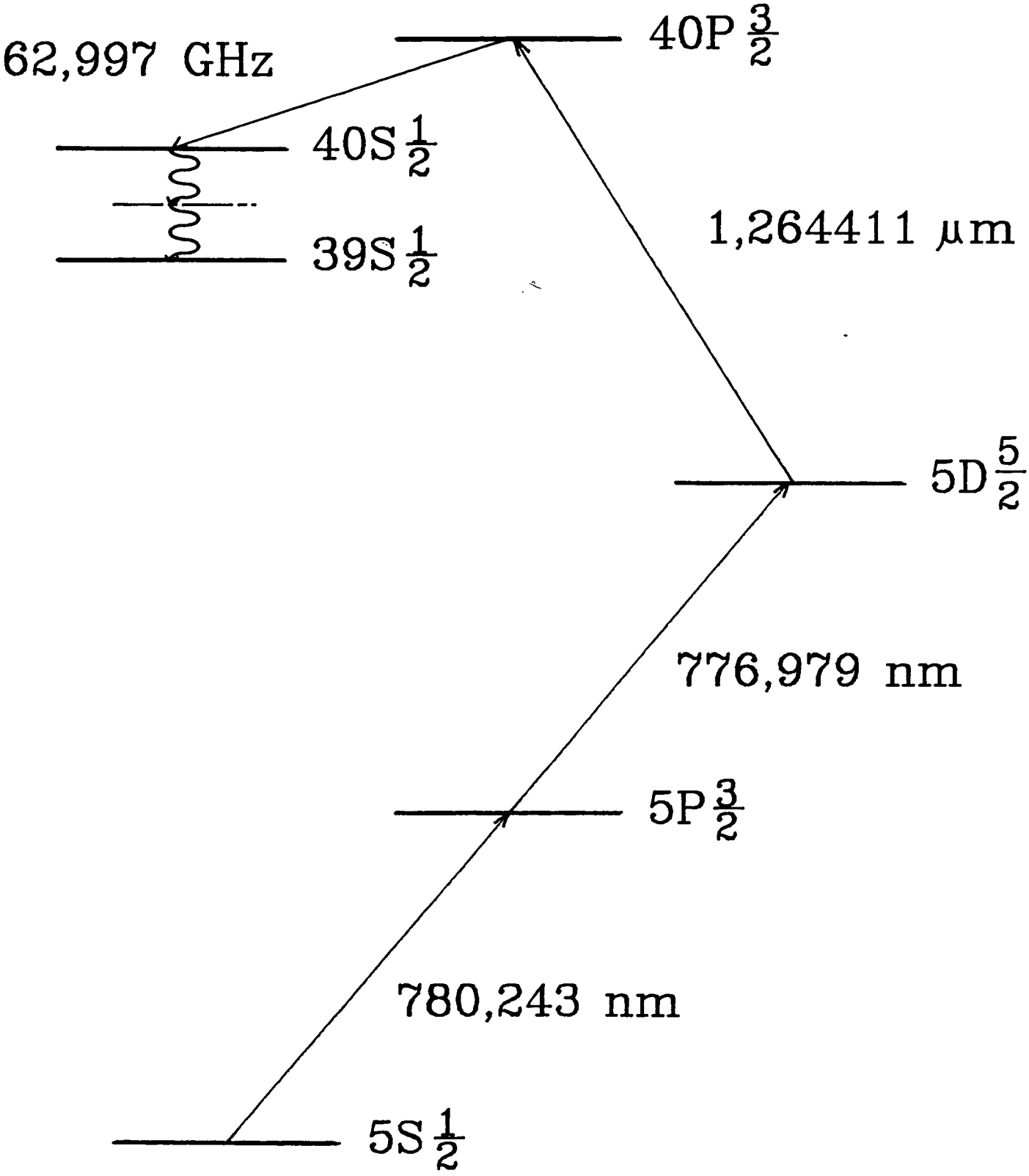

62,997 GHz
40P 3/2
40S 1/2
39S 1/2
1,264411 µm
5D 5/2
776,979 nm
5P 3/2
780,243 nm
5S 1/2

Figure I.11

3) - L'excitation atomique

Le niveau à peupler est l'état 40 $s_{1/2}$ du Rubidium, le point de départ est l'état fondamental 5 $s_{1/2}$. Le schéma d'excitation est représenté Fig. (I.11). Il utilise trois transitions dans le proche infrarouge et un échelon micro-onde. Les trois transitions optiques peuvent être efficacement induites simplement à l'aide de laser à l'état solide : des diodes laser [P. Fillipowicz 1985]. Ces nouvelles sources connaissent actuellement un développement technologique considérable et nous allons montrer que leur utilisation est particulièrement agréable.

a) - Généralités sur les diodes laser

Le principe d'un tel laser est simple (Fig. I.12) : le milieu actif est constitué par une jonction entre semiconducteurs capable d'émettre des photons lorsqu'un courant la traverse. Les facettes clivées de la "puce" que constitue la jonction se comportent comme des miroirs (indice effectif du milieu élevé) et fournissent la rétroaction nécessaire à une oscillation continue. La cavité ainsi formée a des dimensions très réduites (largeur 300 μm, dimensions transverses $\sim$ 1 μm). Elle forme donc un guide d'onde monomode. L'intervalle entre modes longitudinaux est assez grands : de l'ordre de 2 Å. Le premier avantage est un encombrement très faible et l'absence de réglages délicats : il suffit de faire passer dans la diode un courant de quelques dizaines de mA pour obtenir un faisceau laser de 5 à 10 mW. Le second réside dans la facilité d'accord : la longueur d'onde émise dépend à la fois du courant qui traverse la diode et de la température (variation de l'indice, de la longueur de la cavité et de la position du niveau de Fermi des électrons au niveau de la jonction). Cette dépendance double est représentée (Fig. I.13) pour une diode monomode émettant autour de 7800 Å. Les parties raides des marches d'escalier correspondent aux sauts de modes de la diode et les plateaux faiblement inclinés à la plage d'accord d'un mode donné. Celle-ci est très variable et vaut environ 1 Å pour les diodes que nous utilisons.

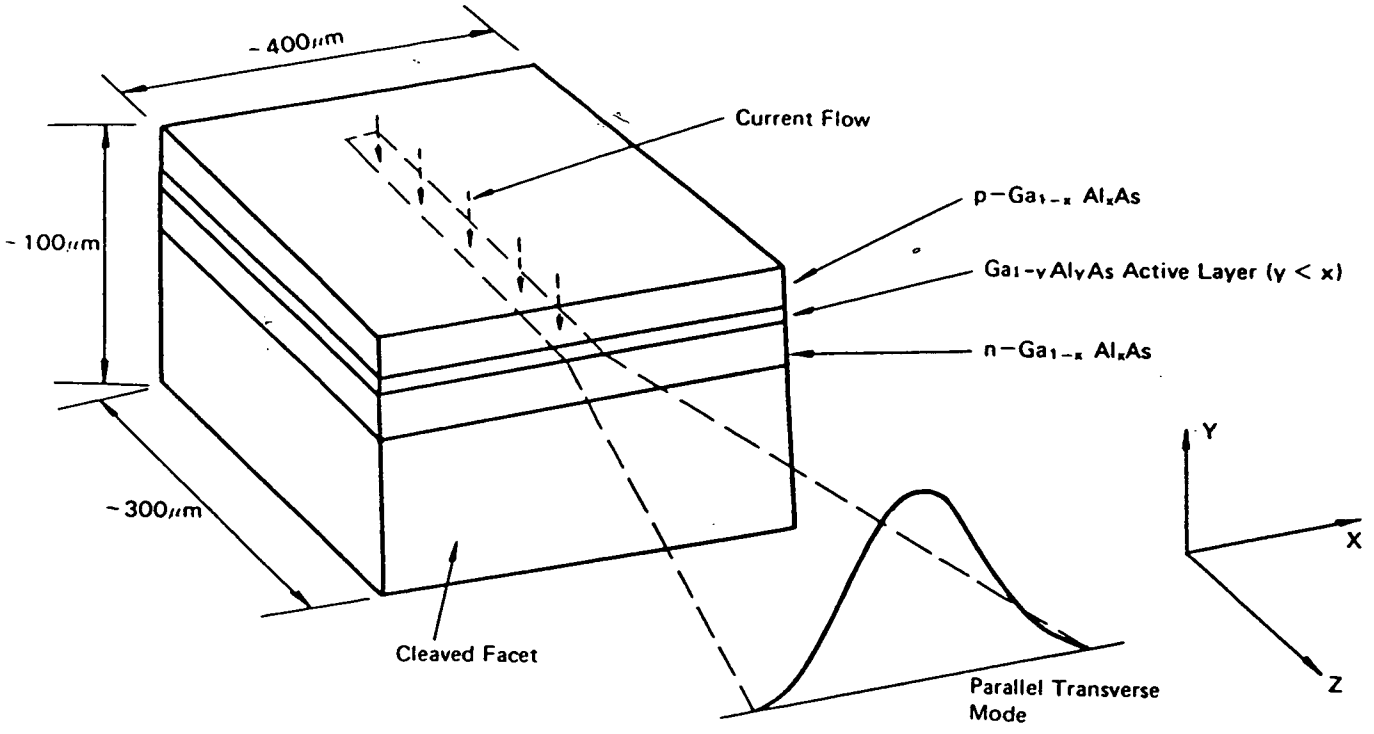
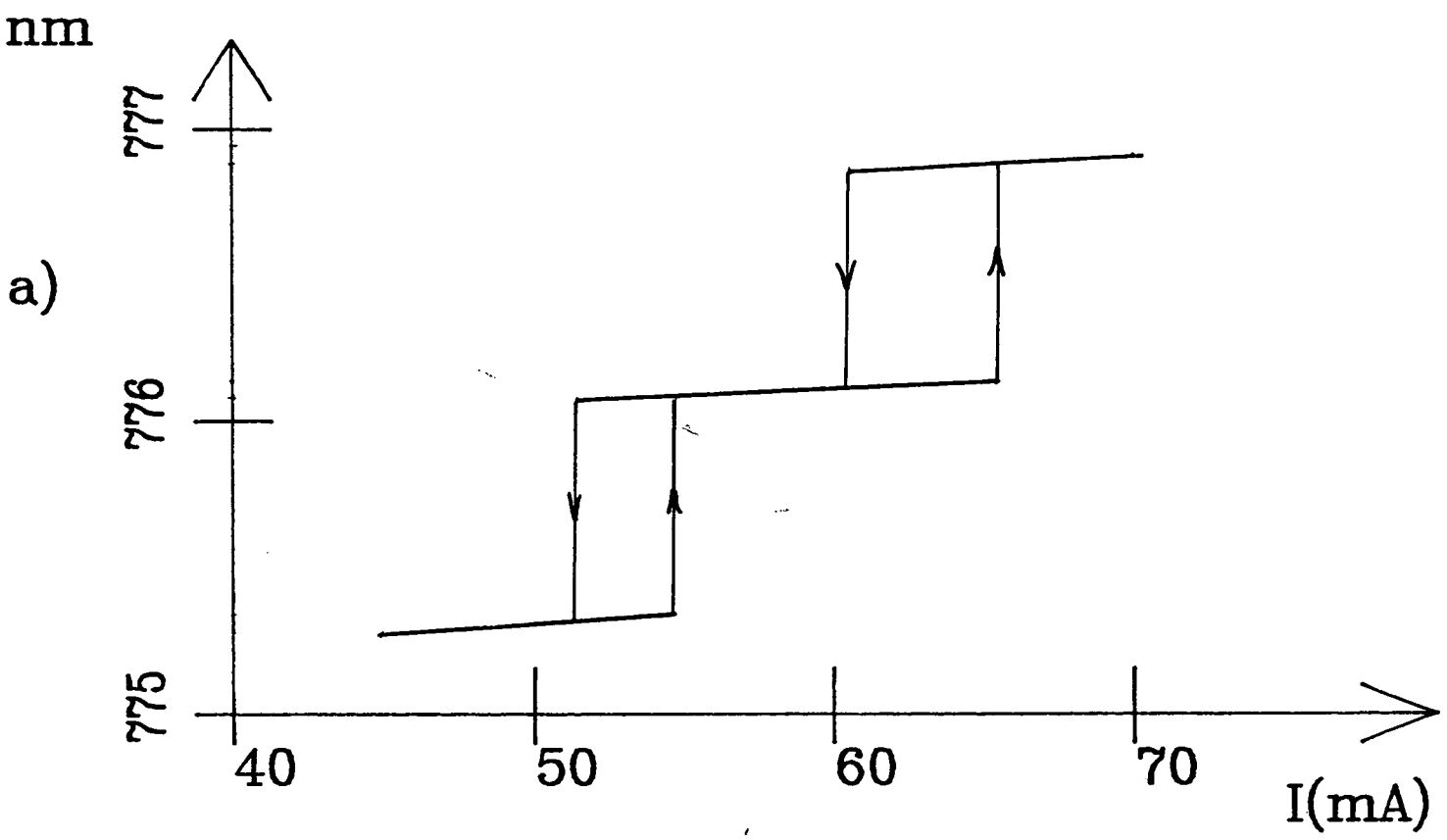

~400μm
~100μm
~300μm
Current Flow
p−Ga1−x AlxAs
Ga1−yAlyAs Active Layer (y < x)
n−Ga1−x AlxAs
Cleaved Facet
Parallel Transverse Mode
Y
X
Z

Figure I.12



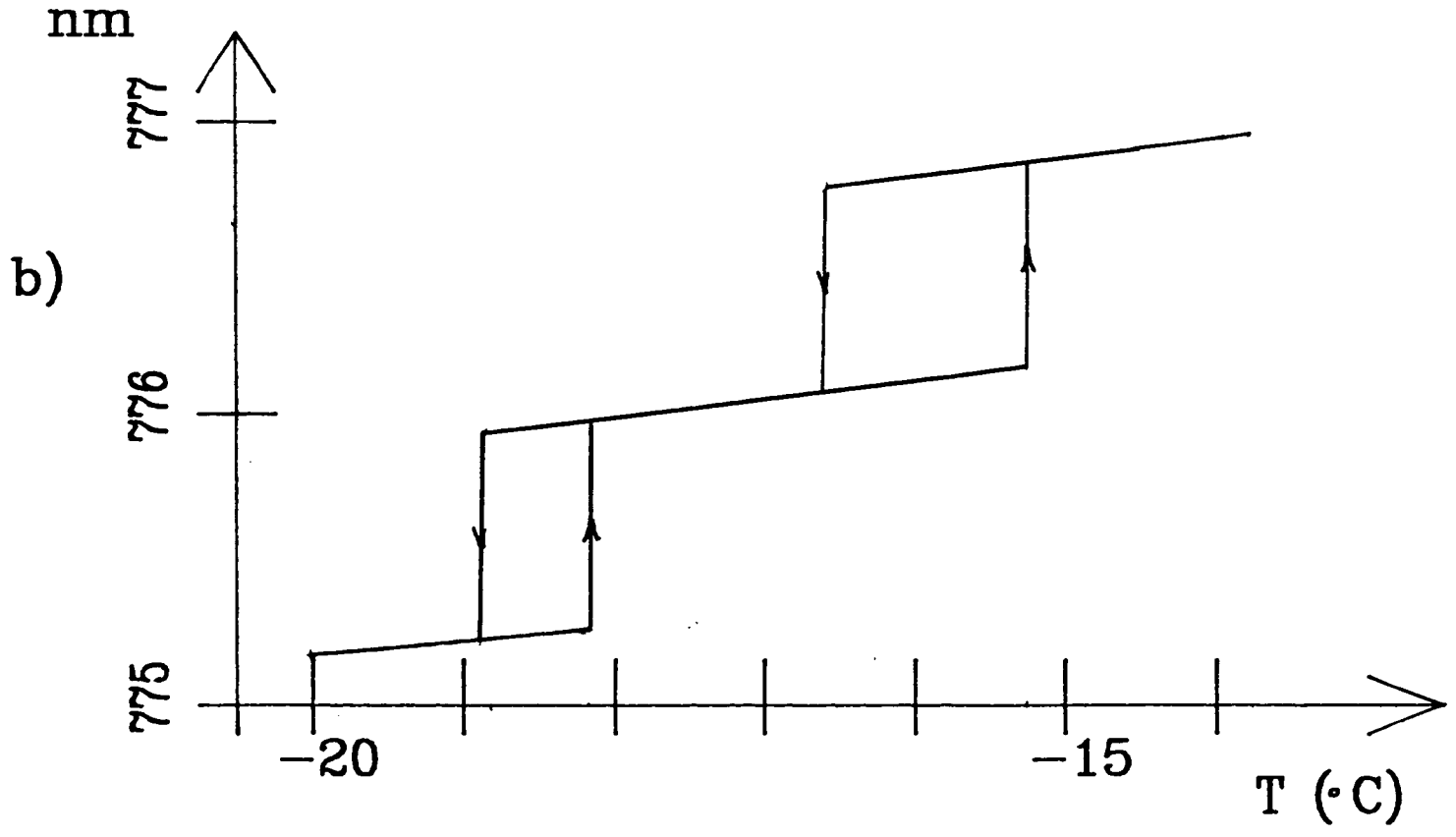


Figure I.13.

En fait, la position des sauts de mode n'est pas parfaitement définie : elle présente des phénomènes d'hystérésis donnant souvent lieu à des instabilités. D'autre part, une fois la cartographie des modes réalisée en fonction à la fois du courant et de la température, on constate que le domaine de stabilité moyen d'un mode est inférieur à son écart par rapport à son plus proche voisin. C'est là l'inconvénient majeur des diodes laser monomodes : elles ne permettent de couvrir un domaine de longueurs d'ondes que par morceaux, ce qui nous oblige à tester un certain nombre de lasers avant d'en trouver un qui coïncide avec les raies de nos atomes. L'utilisation de ces sources laser rend obligatoire une caractérisation précise de chaque diode avant son emploi. Cela est obtenu par utilisation d'un lambdamètre, réalisé au laboratoire, qui affiche en clair, entre une fois par seconde et cinq fois par minute, la longueur d'onde du laser avec une résolution maximale et une reproductibilité de l'ordre de 30 MHz 1m Å. Cette précision d'analyse est suffisante, non seulement pour détecter les sauts de mode d'une diode mais aussi pour pouvoir s'accorder directement sur les raies atomiques dont la largeur est du même ordre de grandeur. L'utilisation de diodes laser rend l'usage d'un lambdamètre pratiquement indispensable.

Ces inconvénients(*) sont largement compensés par deux faits : le domaine de température dans lequel les diodes sont utilisables est très étendu (- 40 à + 60°C selon le constructeur, il est même possible de descendre plus bas). La dépendance moyenne de la longueur d'onde en température valant environ 2.5 Å/°C on peut donc balayer (par morceaux) plus de 200 Å avec une seule diode.

(*) L'impossiblité d'émettre certaines fréquences à l'aide d'une diode n'est cependant pas irremédiable. On peut en effet déplacer les sauts de mode par un couplage du laser à une cavité externe qui joue un rôle de sélecteur de modes [O. Yamamoto et al. 1986, W. Jianglin et al. 1987, L.A. Coldren et al. 1987]. Il y a en fait un moyen très simple et très efficace pour réaliser cela : il

L'autre avantage est la stabilité de la fréquence émise et la facilité de son contrôle par le simple réglage d'un courant dès lors que la température et le courant au niveau de la diode sont bien stables. Les pentes des plateaux des "escaliers" de la figure I.13 permettent de donner la valeur des stabilités requises : les dépendances de λ en température et courant valent + 350 mÅ/°C et + 65 mÅ/mA.

La stabilité de la température doit atteindre le millième de degré, ce qui est obtenu à l'aide d'une régulation D.I.P. (différentielle, intégrale, proportionnelle). La température est mesurée par une thermistance dont la valeur de la résistance varie d'environ 100 Ω/°C. La régulation est réalisée par un module à effet Peltier.

La stabilité en courant est assurée par l'utilisation de batteries 6V pour l'alimentation et un blindage soigneux de tous les cables pour éviter les parasites. Cela assure un bruit sur le courant plus petit que 1 µA qui n'a pas d'effet mesurable sur le spectre de la diode.

La dernière caractéristique importante en pratique de ces lasers est la très forte divergence du faisceau à la sortie de la diode. Elle rend nécessaire l'utilisation d'une optique spécialement conçue, assez délicate à régler.

(* suite) suffit de placer à une centaine de microns de la facette de sortie du laser une lame partiellement réfléchissante montée sur une cale piézoélectrique. Nous n'avons cependant pas eu recours à cette méthode puisque nous avions la chance d'avoir des diodes directement utilisables. Les diodes étant très sensibles à une contre-réaction très faible, il faut absolument éviter toute réflexion parasite susceptible de revenir vers la diode : par exemple, la réflexion normale sur une fenêtre anti-reflet placée à plusieurs mètres suffit parfois à perturber un mode et rendre impossible une excitation atomique stable.

b) - La réalisation de l'excitation

Les deux premiers échelons laser (Fig. I.11) $5s_{1/2} \longrightarrow 5p_{3/2}$ à 7802.444 Å et $5p_{3/2} \longrightarrow 5d_{5/2}$ à 7759.7 Å sont dans la gamme d'accord des diodes GaAlAs (lasers de "compact-disk"). Elles sont donc très faciles à obtenir et très peu coûteuses. La longueur d'onde typique est 7800 Å mais la dispersion de fabrication est assez large (± 200 Å). Les diodes dont nous disposons émettent à 7957 Å et 7846 Å à température ambiante. Il fallait les refroidir de plusieurs dizaines de degrés pour atteindre les fréquences atomiques. Cela ne présente pas de difficultés car le simple module Peltier utilisé pour la régulation de la température permet d'atteindre facilement - 20°C. Pour des températures plus faibles, on l'associe à un module plus gros placé sous vide. On atteint alors - 50 à - 60°C. Cette contrainte de travailler à basse température nécessite toutefois de placer les lasers sous vide (ou sous atmosphère inerte, argon par exemple) dans des récipients étanches.

Le troisième échelon, $5d_{5/2} \longrightarrow 40p_{3/2}$ avec une longueur d'onde de 1,264411 µm est à la portée d'une diode laser infrarouge émettant à λ 1.3 µm. De telles diodes sont utilisées habituellement pour la communication par fibre optique, leur longueur d'onde correspond à un minimum d'absorption des fibres. L'utilisation d'une diode commerciale est possible mais malaisée. La température à atteindre pour arriver à 1,26 µm est en effet inférieure à - 100°C. Il est alors nécessaire d'utiliser un cryostat à azote pour refroidir la diode, et la régulation de température devient difficile à stabiliser. Nous n'avons pas eu à poursuivre plus avant dans cette voie car nous avons pu obtenir par ailleurs (grâce à Messieurs De Cremoux et Krakovski, Thomson CSF), le prêt de diodes du même type dont la longueur d'onde à température ambiante valait directement 1,26 µm.

Les diodes dans ce domaine de longueur d'onde ne sont cependant pas tout à fait aussi faciles à utiliser que celles des deux premiers échelons. Elles sont aussi stables et accordables, la

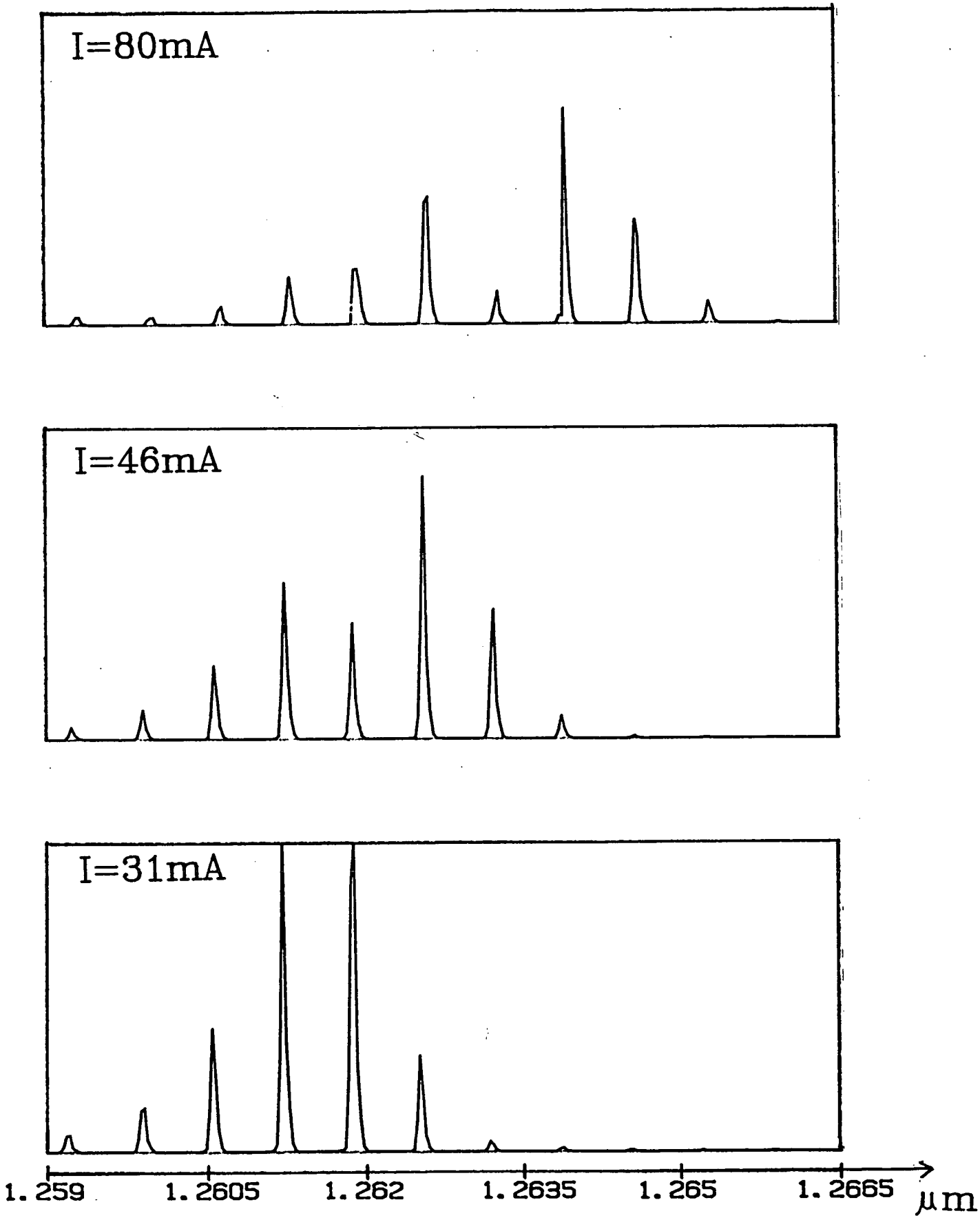
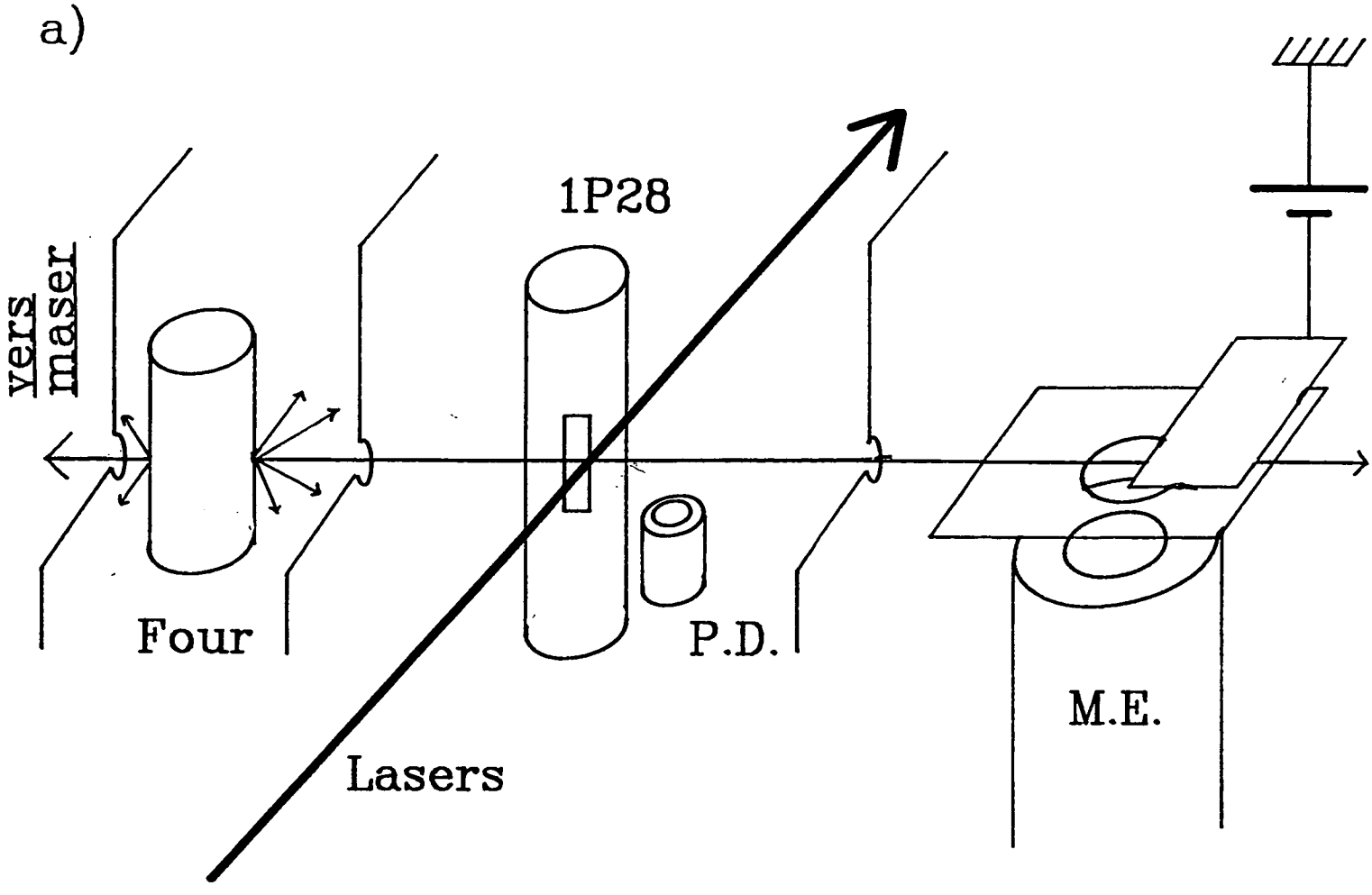


Figure I.15

puissance totale fournie est comparable, mais elles sont multimodes. La figure (I.15) montre le spectre d'une de ces diodes : la puissance lumineuse est répartie entre une dizaine de pics mais deux ou trois d'entre eux sont nettement plus intenses que leurs voisins. Ceci présente à la fois un avantage et un inconvénient : il n'y a plus de sauts de modes brutaux lorsqu'on fait varier la température ou le courant et le domaine de stabilité d'un mode est donc beaucoup plus large que dans le cas monomode. La contrepartie est qu'il n'y a, dans chacun des modes, qu'une fraction de la puissance totale. Une telle diode permet donc d'atteindre presque toutes les longueurs d'onde (sans "trous" dans le spectre) mais parfois avec une intensité très faible à la fréquence voulue. Là aussi une caractérisation de chaque laser et un tri s'avèrent nécessaires. Ces opérations sont moins faciles qu'à 7800 Å : si aucun mode n'est nettement plus puissant que les autres la mesure au lambdamètre est impossible (le contraste des franges d'interférences s'annulant parfois). Cependant, une optimisation judicieuse du courant et de la température permettent en pratique la détermination de la fréquence des modes puis l'accord de l'un d'entre eux. Nous avons mesuré la dépendance en courant de la longueur d'onde d'un mode : 50 mA/mA, ainsi que l'intervalle entre modes : 6,6 Å.

Le dispositif d'asservissement des lasers sur les transitions atomiques apparaît Fig. (I.16.a) où est présentée la partie correspondante du montage expérimental. Nous disposons d'un jet atomique double, dont une partie sert à l'expérience de maser et l'autre à la stabilisation des diodes.

Les signaux de fluorescence sur lesquels reposent les asservissements sont représentés Fig. (I.16.b). La transition $5s \longrightarrow 5p$ est détectée par une photodiode silicium (Fig. I.16.a) sensible à la fluorescence infrarouge correspondante. Le spectre de fluorescence ainsi obtenu est présenté Fig. (I.17.a). Il y a quatre groupes de raies, soit deux pour chacun des deux isotopes du rubidium présents dans notre jet (72,15 % ^{85}Rb et 27,85 % ^{87}Rb dans le rubidium naturel). Chacun de ces groupes est constitué de trois raies (dont seulement deux sont résolues dans l'un des cas). Ce



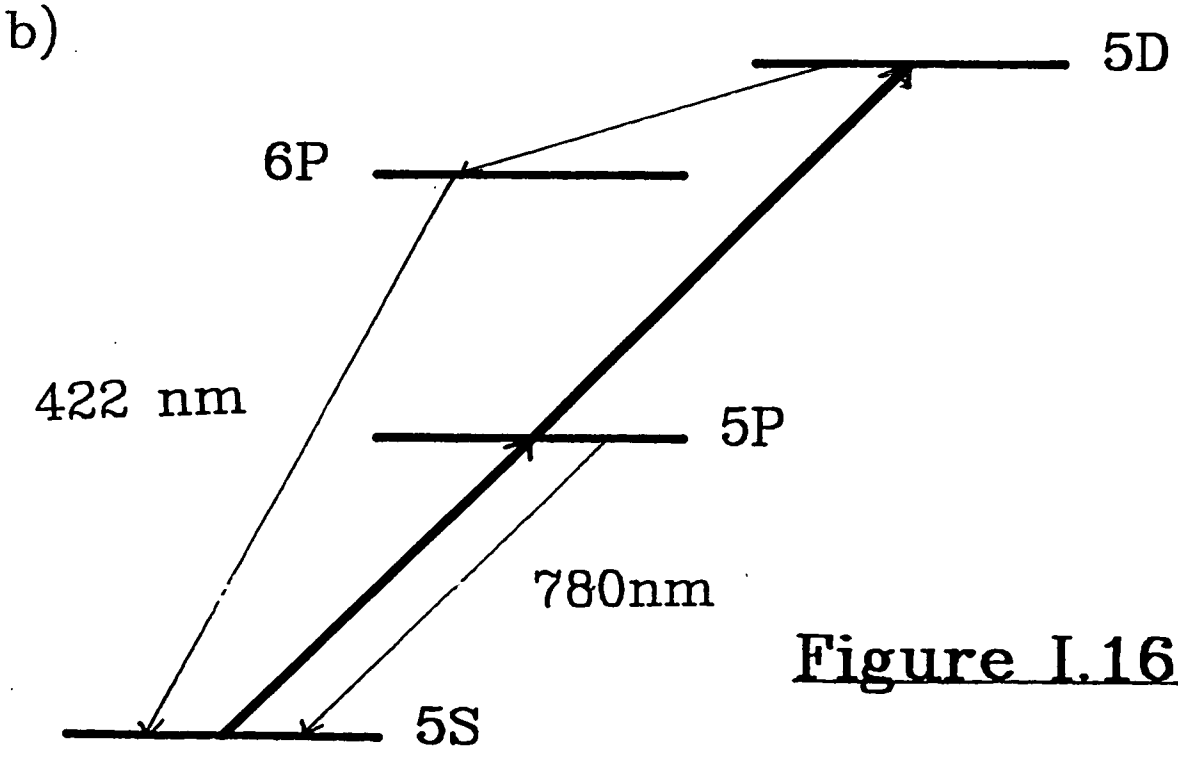
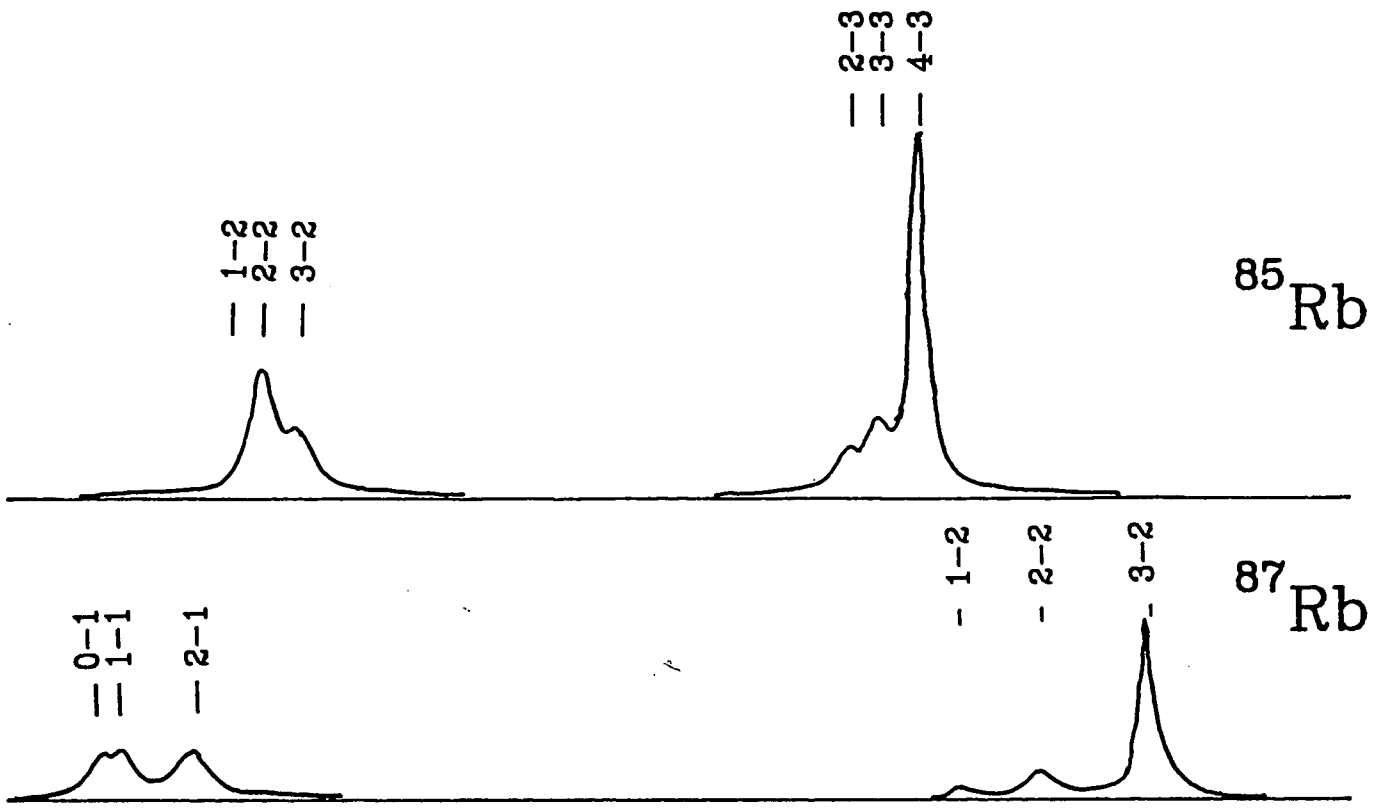


Figure I.16.


2-3
3-3
4-3
1-2
2-2
3-2
85Rb
1-2
2-2
3-2
0-1
1-1
2-1
87Rb

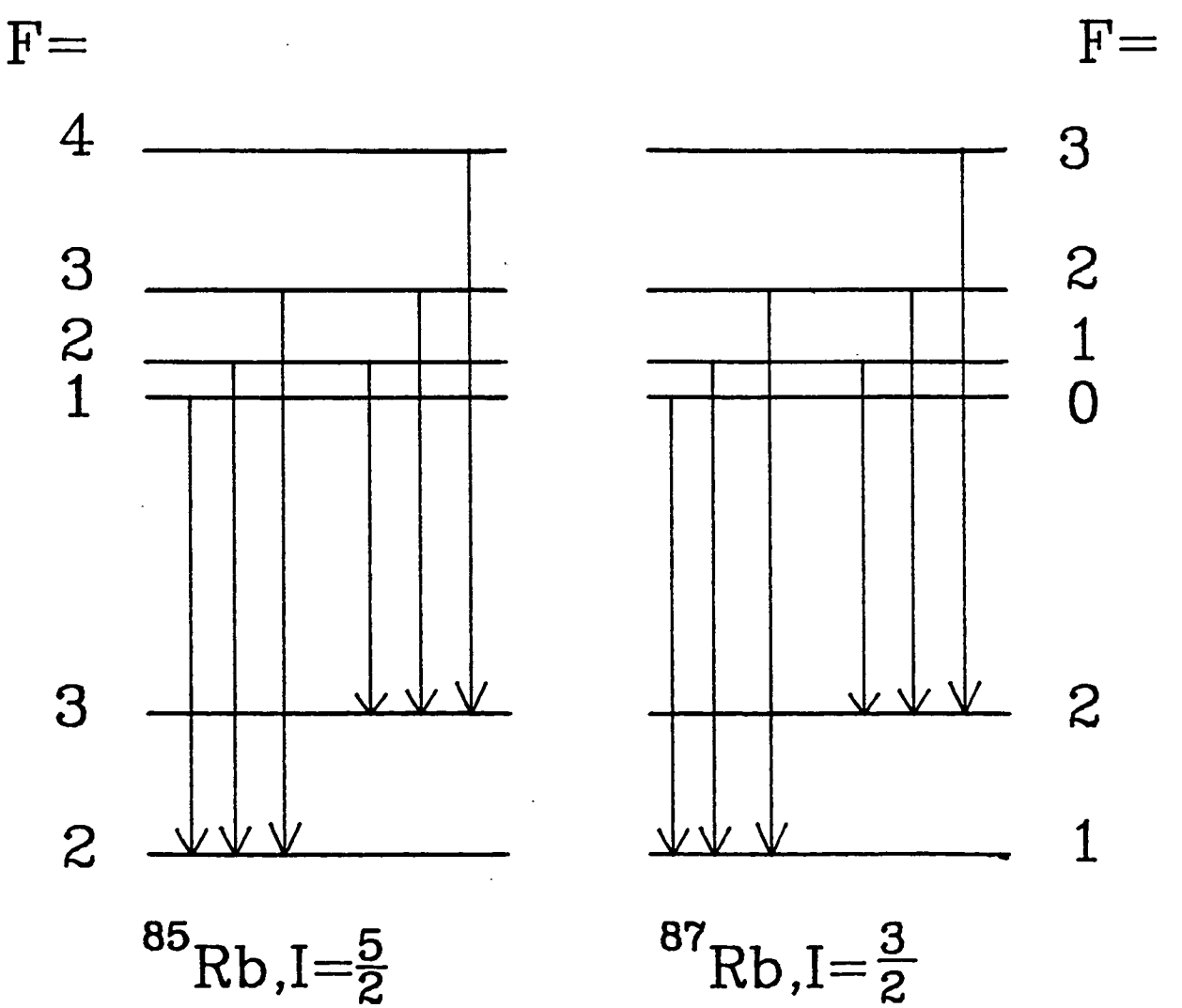

F=
F=
4
3
2
1
3
2
3
2
2
1
0
2
1
85Rb,I=5/2
87Rb,I=3/2

Figure I.17

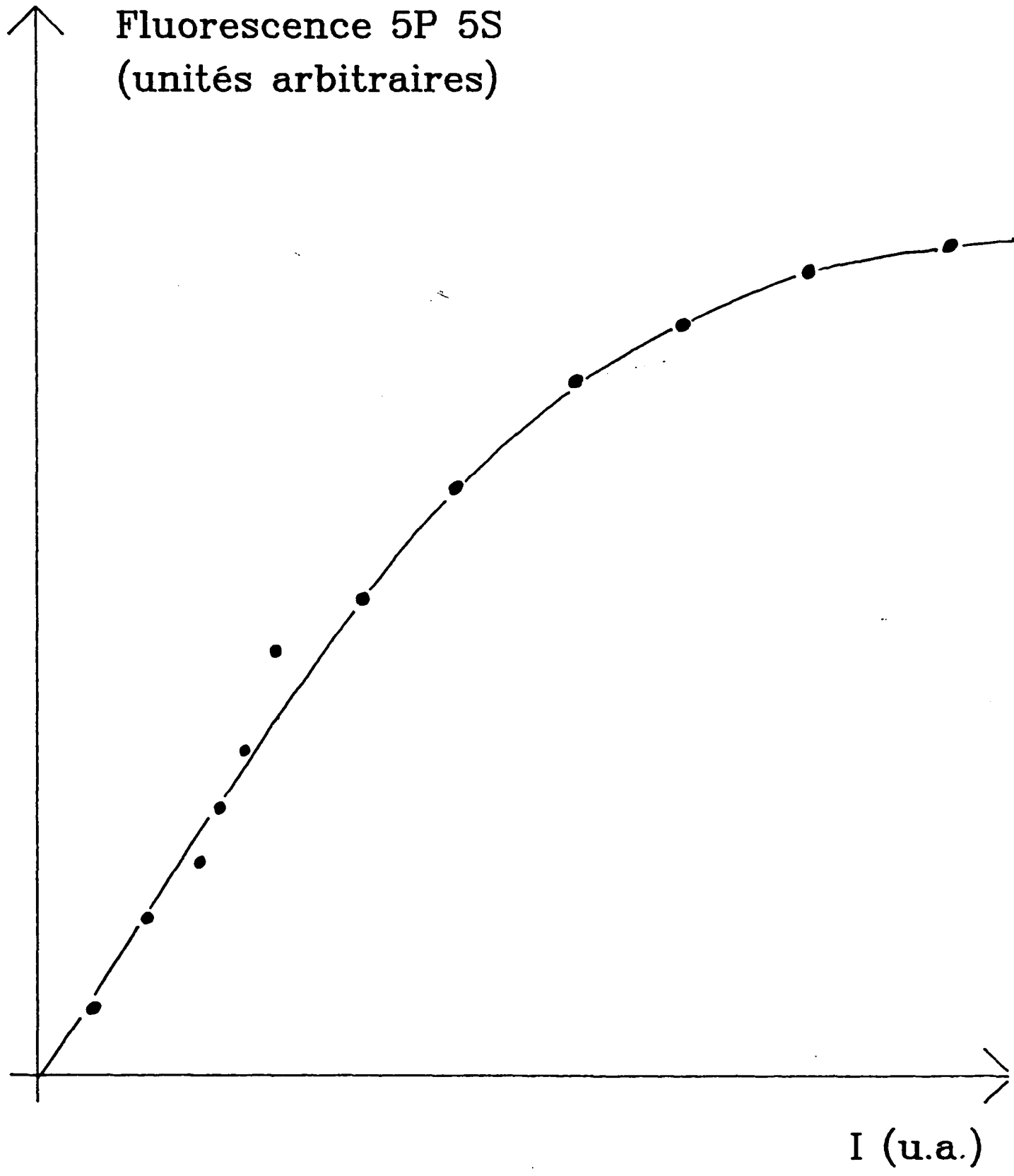


Figure I.18.

spectre correspond à la structure hyperfine des niveaux $5s_{1/2}$ et $5p_{3/2}$ du rubidium (Fig. I.17.b) dont le spin nucléaire vaut 5/2 pour l'isotope 85 et 3/2 pour l'isotope 87. La raie choisie pour notre préparation atomique est la transition F 3 $\longrightarrow$ F 4 du rubidium 85 qui est la plus intense : c'est en effet l'isotope majoritaire et c'est la seule transition fermée vis-à-vis du pompage optique. La largeur des raies (environ 50 MHz) correspond à la largeur spectrale "naturelle" de la diode laser ($\sim$ 30 MHz), à l'effet Doppler résiduel ($\sim$ 20 MHz) et à la largeur naturelle des niveaux atomiques ($\sim$ 20 MHz).

Nous avons aussi étudié la saturation de cette raie en faisant varier la puissance laser. La Fig. (I.18) présente le résultat et montre qu'à intensité maximum (puissance de l'ordre du mW focalisée sur 1 mm^2) la saturation de la raie est atteinte.

La résonance $5p_{3/2} \longrightarrow 5d_{5/2}$ est détectée indépendamment du premier échelon à l'aide d'un photomultiplicateur de type 1P28 RCA choisi pour son insensibilité à la lumière de fluorescence infrarouge 5p $\longrightarrow$ 5s et pour son gain (faible) pour les photons bleus émis par fluorescence 6p $\longrightarrow$ 5s lors d'une cascade à partir du niveau 5d. La pureté spectrale du laser n'est pas suffisante pour pouvoir sélectionner la structure hyperfine du niveau 5d, la largeur de la raie vaut ici aussi 50 MHz.

Finalement, l'accord du troisième échelon $5d_{5/2} \longrightarrow 40p_{3/2}$ est détecté par ionisation de l'état 40p dans le condensateur C (Fig. I.16.a). On a là encore une raie large de 50 MHz dont la structure n'est pas résolue. A partir de ce niveau nous n'avons plus qu'à induire la transition $40p_{3/2} \longrightarrow 40s_{1/2}$ dont la fréquence, dans le domaine millimétrique vaut 62,997 GHz. Cela est réalisé grâce à un klystron bande X, dont on utilise l'harmonique 6, généré dans une diode Schottky. On ne résoud ici aucune structure.

Le principe de nos asservissements est très simple du fait de la grande stabilité intrinsèque des lasers : les seuls effets à compenser sont les dérives à long terme dues par exemple aux variations de température dans la pièce ou à la décharge des batteries utilisées pour l'alimentation. On constate qu'une fois

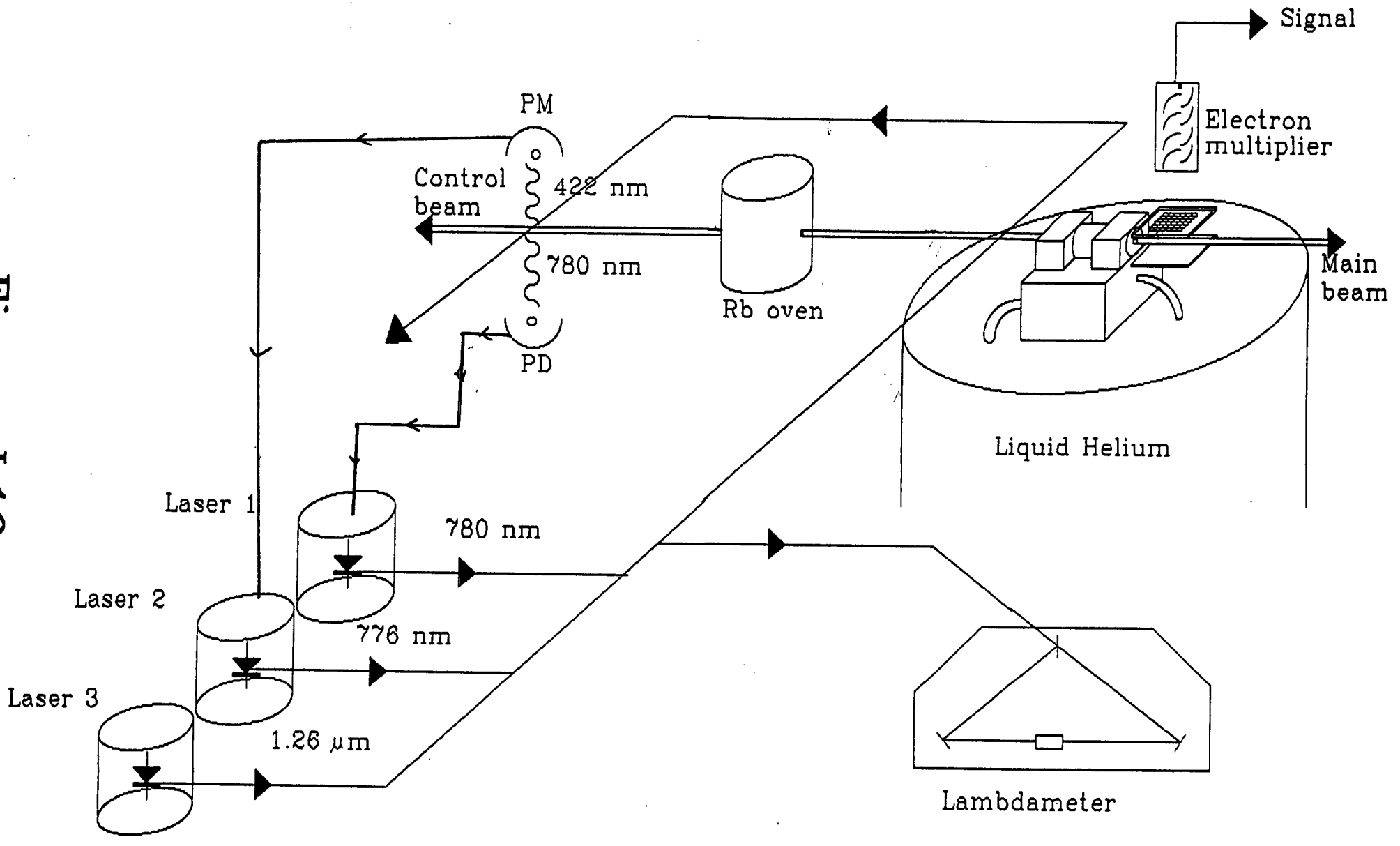

Signal
Electron multiplier
PM
Control beam
422 nm
780 nm
PD
Rb oven
Main beam
Liquid Helium
Laser 1
780 nm
Laser 2
776 nm
Laser 3
1.26 µm
Lambdameter

Figure I.19

accordés, les deux premiers échelons restent spontanément à résonance pendant une durée de l'ordre de la minute, le troisième et le dernier pendant 30 minutes à 1 heure (leur asservissement n'est pas nécessaire). Le principe de stabilisation des deux diodes à 7800 A est le suivant : un ordinateur désaccorde périodiquement légèrement une des diodes avec une constante de temps de l'ordre de 0,1 s, il mesure alors la variation d'un des signaux de fluorescence et réajuste en conséquence la valeur du courant dans la diode pour maximiser ce signal. Ce système, très souple à utiliser, permet d'atteindre une stabilité de la population de Rydberg de l'ordre de 20 % pendant plus d'une heure, sans stabilisation du troisième échelon.

Le flux atomique ainsi préparé dans le niveau $40s_{1/2}$ correspond à environ $2\ (\pm\ 1).10^{5}$ at/s à l'entrée de la cavité avec un four à 123°C ($P \approx 10^{-3}$ torr). On peut aller jusqu'à 6.10^{7} at/s en chauffant jusqu'à 230°C.

4) - Premiers résultats expérimentaux

a) - Le montage et l'acquisition de données

L'ensemble de l'expérience (Fig. I.19) est organisé autour d'un four à rubidium avec deux orifices : l'un en direction du cryostat où se trouve la cavité du maser, l'autre vers la zone d'asservissement des lasers. Le lambdamètre est directement utilisé pour réaliser l'accord des deux lasers à 7800 A. Pour le troisième, qui ne présente pas de sauts de modes, il suffit de repérer une fois pour toutes les valeurs de température et de courant optimales. L'accord fin est alors réalisé directement sur le signal Rydberg. L'acquisition de données consiste en la mesure et l'enregistrement des populations des niveaux $40s_{1/2}$ et $39s_{1/2}$. Elle est contrôlée par microordinateur.

Le schéma du montage (Fig. 1.19) qui prend place au fond

du cryostat fait apparaître les éléments essentiels du maser : tout d'abord la préparation laser des atomes de Rydberg (partie gauche de la figure). Cette préparation a lieu à l'intérieur d'une pièce massive de cuivre (non représentée) percée de deux trous croisés à 90° : l'un pour les atomes, l'autre pour les trois lasers. Le rôle de cette pièce est d'abord d'assurer la collimation du jet pour éviter la pollution des parois de la cavité et ensuite d'écranter les champs électriques parasites. Ils sont créés par les cales piézoélectriques d'accord de la cavité et par la détection atomique par ionisation. Ils seraient suffisants pour perturber notablement le niveau $40p_{3/2}$ et diminuer dramatiquement l'efficacité de l'excitation.

Au centre de la figure apparaît la cavité. Le système d'accord n'est pas représenté ici. Nous voyons par contre les deux guides d'ondes (tubes courbés) couplés à la cavité et qui ressortent vers l'extérieur en haut du cryostat. Le guide à l'entrée de la cavité est utilisé pour induire la transition $40p_{3/2} \longrightarrow 40s_{1/2}$ par injection de la microonde à 62,997 GHz. Il est important de remarquer que cette fréquence étant inférieure à la fréquence de résonance, nous sommes certains que cette onde ne pénètrera pas dans le résonateur, ce qui assure la séparation spatiale de la zone de préparation atomique par rapport à la zone d'interaction avec le champ du maser. Le système microonde nous permet d'envoyer simultanément une seconde fréquence qui teste l'accord et la surtension de la cavité. Cette seconde microonde nous permettra aussi de réaliser la spectroscopie très fine des niveaux de Rydberg qui nous intéressent.

Juste à la sortie de la cavité, nous avons le condensateur où a lieu l'ionisation des atomes de Rydberg. Une des deux plaques est percée pour laisser passer les électrons arrachés qui sont alors détectés par un multiplicateur d'électrons. Les seuils d'ionisation en champ électrique des niveaux que nous étudions sont les suivants :

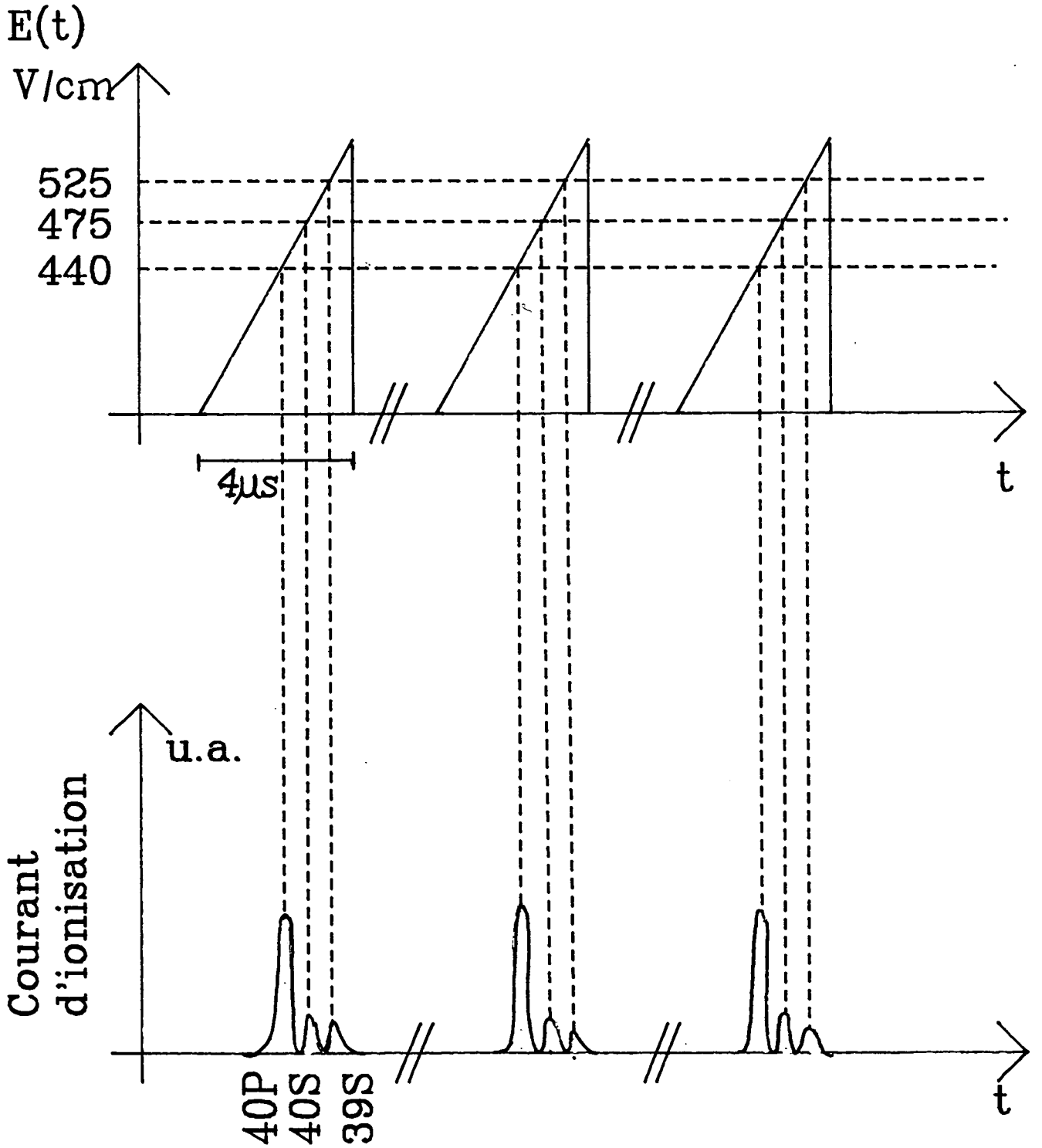


Figure I.20.

niveau	40p	40s	39p	39s	37d
seuil d'ionisation V/cm ± 10 V/cm	440	475	475	525	> 550

(12)

Ce sont des valeurs de champs relativement faibles.

Pour avoir une mesure quasi-simultanée de la population de chacun des niveaux, nous appliquons au condensateur un champ électrique dépendant du temps (Fig. I.20.a) : les différents niveaux de Rydberg peuplés sont alors ionisés à des instants différents. L'enregistrement du courant fourni par le multiplicateur d'électrons en fonction du temps présente donc des pics (Fig. I.20.b) à chaque instant où le champ atteint la valeur du seuil d'ionisation d'un niveau peuplé. L'aire d'un de ces pics est directement proportionnelle à la population du niveau correspondant.

Au seuil du maser, le flux atomique est si faible que le signal d'ionisation d'une seule rampe de champ correspond à la détection d'un seul électron. L'obtention d'un spectre des populations atomiques passe donc par le moyennage d'un grand nombre d'enregistrements. Nous appliquons la rampe de champ avec un taux de répétition élevé (7 kHz) et nous enregistrons le courant d'ionisation durant chaque rampe à l'aide d'un digitaliseur de transitoires rapide réalisé au laboratoire par M. Gross (fréquence d'échantillonnage 100 MHz). Les données sont alors additionnées et stockées dans un moyenneur qui est périodiquement lu par un microordinateur. Un moniteur affiche directement la courbe correspondant au dernier moyennage. Le taux de récurrence maximal est de l'ordre de dix affichages par seconde ce qui permet une lecture confortable des signaux dans toutes les phases de l'expérience. Toutes les courbes ainsi produites sont instantanément traitées. On obtient alors la population totale détectée et le taux de transfert entre les deux niveaux de la transition.

L'ensemble de l'appareillage étant prêt, il ne nous

restait plus qu'à réaliser une spectroscopie très fine de la raie du maser pour savoir précisément où accorder la cavité.

b) - Spectroscopie de la raie à deux photons

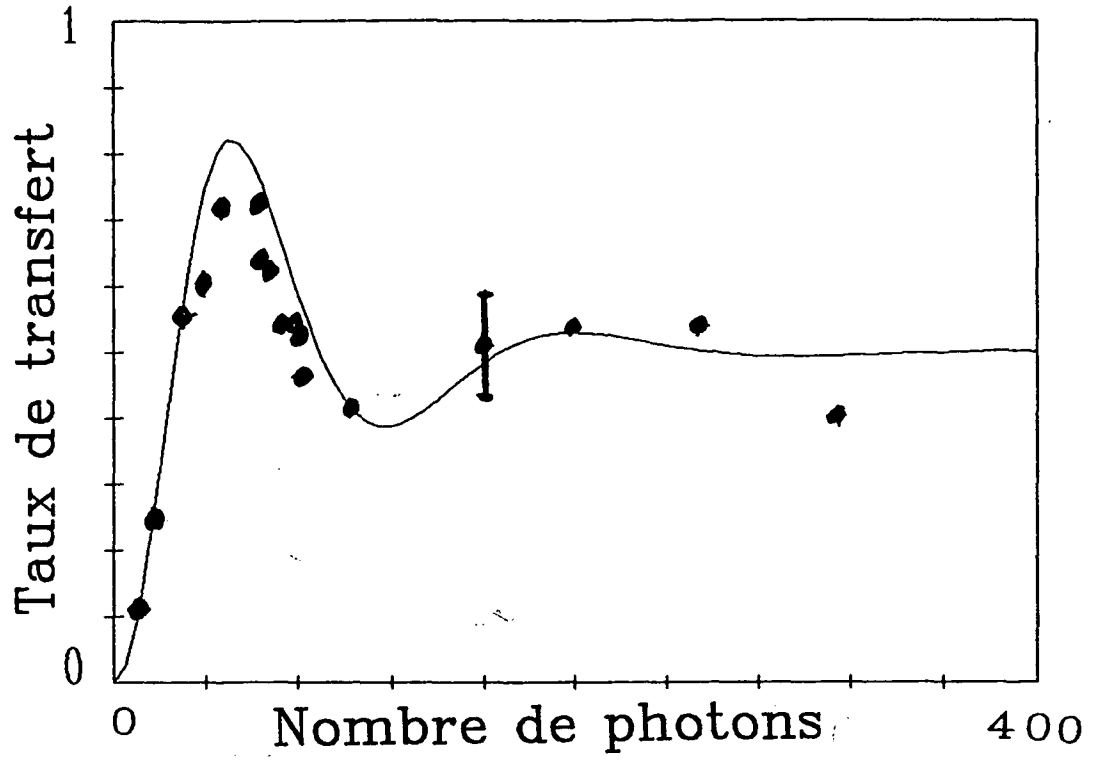
La précision des expériences de spectroscopie [D. Meschede 1984] qui nous ont fait choisir le rubidium était de l'ordre de quelques centaines de kHz. Nous attendions une largeur de raie à deux photons dans la cavité de l'ordre de 40 kHz. Une expérience préliminaire de spectroscopie était donc utile.

Elle a été réalisée après avoir remplacé la cavité par une portion de guide d'onde cylindrique ayant les mêmes dimensions externes et dans lequel on induit la transition à deux photons. La raie obtenue a une fréquence centrale de 68,4158 GHz et une largeur de 200 KHz. Une fois le centre de la raie déterminé, une spectroscopie encore plus fine devenait réalisable dans la cavité.

Elle a été effectuée en cavité supraconductrice. Ceci rend nécessaire un certain nombre de précautions. La largeur minimum de la résonance atomique est liée au temps d'interaction des atomes avec le champ dans la cavité. Elle vaut 40 kHz. Comme la cavité peut avoir une résonance aussi étroite que 500 Hz (grâce à sa très haute surtension), il est clair que tout simple balayage en fréquence de la micro-onde ne pourrait que redonner cette largeur. Une première parade consiste à abaisser autant que possible la surtension de la cavité, c'est-à-dire à élargir sa résonance. Ceci est possible tout simplement en ne pompant pas l'hélium. La température de la cavité est alors de 4,2 K, son facteur de qualité vaut $2.7\ 10^6$ (valeur BCS), et sa largeur 25 kHz. Nous voyons ici le principe d'une méthode de contrôle de ce paramètre entre 25 kHz et 500 Hz : il suffit de réguler la température du bain d'hélium entre 4,2 et 1,7 K.

La réalisation d'un spectre dans de telles conditions n'est cependant pas aisée : la plus grande largeur de cavité que nous puissions obtenir demeurant plus faible que la largeur

a)



b)

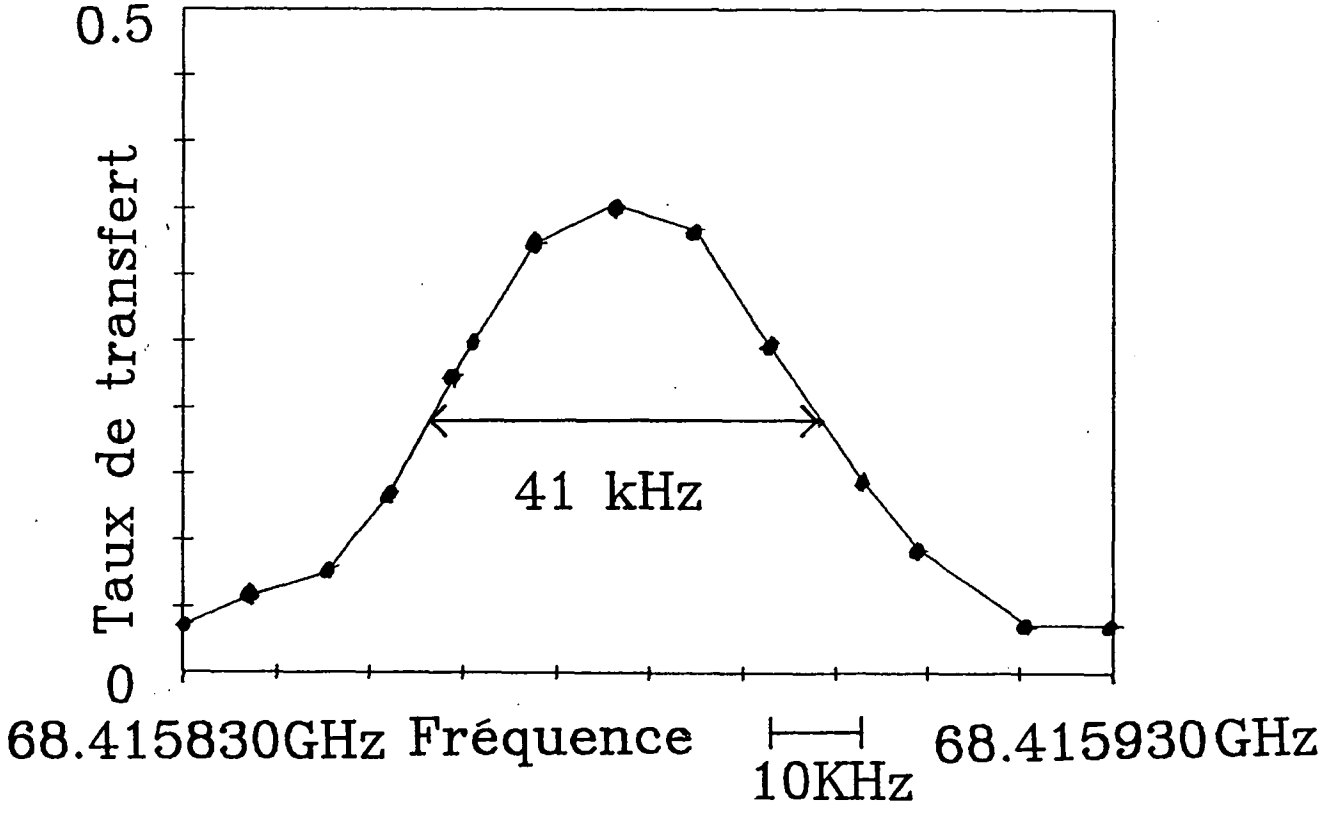


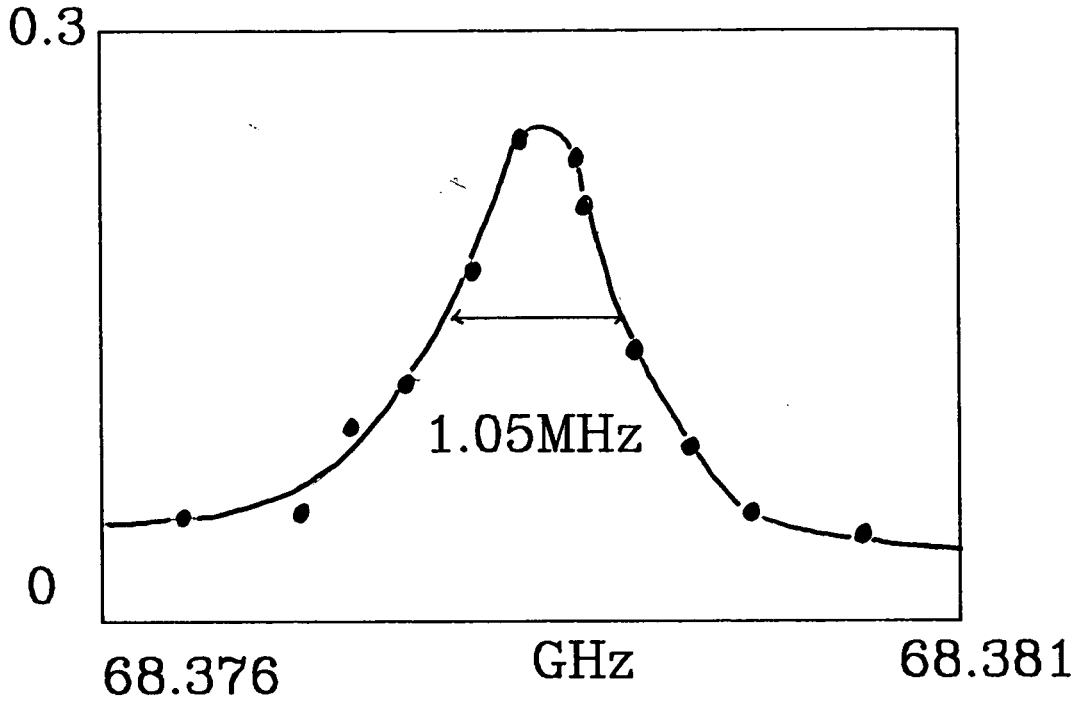
Figure I.21

minimale prévisible de la raie (25 kHz contre 40), il n'est pas possible de balayer simplement la microonde dans une cavité accordée au centre de la raie : on n'observerait encore que la résonance de la cavité. La procédure à suivre est la suivante : on fixe la puissance de la microonde et on balaie simultanément sa fréquence et celle de la cavité de sorte que l'on reste toujours à résonance. Les atomes sont alors soumis à un champ d'intensité constante et de fréquence variable qui permet de réaliser la spectroscopie. La dernière chose à vérifier est que l'on ne sature pas la raie car elle pourrait alors s'élargir à cause de la puissance de la microonde. Pour cela, on fait varier cette puissance dans une cavité accordée (Fig. I.21.a). La variation du taux de transfert en fonction de la puissance met alors en évidence la première arche de l'oscillation de Rabi à deux photons dans un champ imposé variable. Une seule arche est visible ici. En effet, comme nous avons une dispersion des temps d'interaction de l'ordre de ce temps lui-même (Δt_{int} 20 μs $\approx t_{int}$ jet thermique à distribution maxwellienne), les oscillations de Rabi sont brouillées dès que la puissance est telle que :

$$\Omega_{2\varphi}(N).\Delta t_{int} \approx \Omega_{2\varphi}(N).t_{int} \sim \pi$$

Cela correspond à une seule oscillation. Cette oscillation de Rabi observée nous permet alors de déterminer la puissance nécessaire à induire la transition sans toutefois la saturer.

La largeur de la raie mesurée (Fig. I.21.b) correspond à la limitation du temps d'interaction des atomes avec la cavité. La structure hyperfine de la raie n'est pas résolue : elle ne vaut que 16 kHz sur la transition à deux photons. D'autre part, l'effet Zeeman (2,8 MHz/Gauss) est négligeable puisque le champ magnétique dans le maser est annulé à une fraction de milligauss près (à l'aide de bobines et d'un blindage en mumétal). L'effet Stark a lui aussi été étudié. La grandeur du champ électrique inhomogène présent dans la cavité a été mesurée à partir de la largeur de la transition à un photon $39p_{3/2} \longrightarrow 39s_{1/2}$ (Fig. I.22). Celle-ci vaut 1,05 MHz. Elle est produite par une inhomogénéité de champ de 0,23 V/cm. Ceci correspond au champ créé par les potentiels de



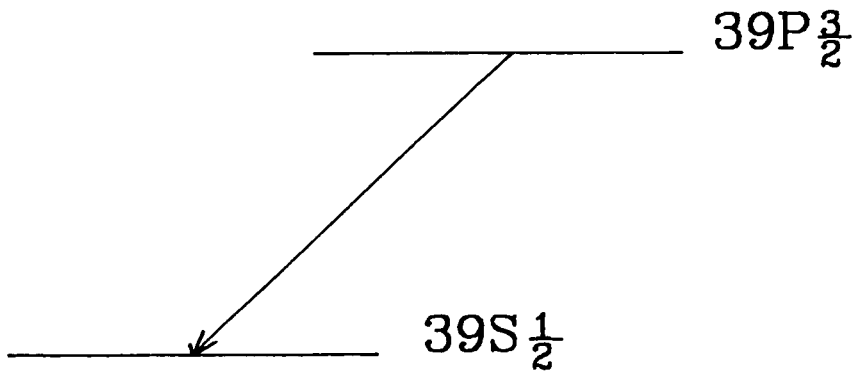


Figure I.22

contact entre les cristaux de niobium qui constituent la cavité. Ce potentiel valant environ 1 V, et la taille des cristaux étant de l'ordre de 1,5 mm, une telle valeur du champ, à une distance des parois d'environ 3 mm, n'est pas étonnante. La raie à deux photons est moins sensible aux champs électriques (0,75 MHz.$(V/cm)^{-2}$) l'élargissement produit n'est que de 20 kHz et ne modifie pas notablement la forme de la raie.

c) - Le premier maser à deux photons

Rappelons que la détection de l'effet maser se fait directement sur la mesure des populations atomiques. La figure (I.23.a) présente le signal maser typique. Le premier pic du courant d'ionisation correspond à la population du niveau $40p_{3/2}$, le second à celle de $40s_{1/2}$ et le dernier à celle de $39s_{1/2}$. Nous avons une importante population dans l'état $40p_{3/2}$: l'effet du dernier échelon (transition microonde $40p_{3/2} \longrightarrow 40s_{1/2}$) est d'égaliser les populations de ces deux niveaux lors de l'excitation : mais ensuite, du fait de la plus longue durée de vie de $40p_{3/2}$ (64 μs) par rapport à $40s_{1/2}$ (37,5 μs) il reste à la détection environ 4 fois plus de P que de S.

Le signal expérimental présenté ici [M. Brune et al. 1987] montre un important transfert de population de $40s_{1/2}$ vers $39s_{1/2}$. Ce transfert n'est induit ni déclenché par aucun champ injecté de l'extérieur. C'est un effet à seuil : lorsqu'on diminue la population atomique (Fig. I.23.b) le maser s'éteint brutalement et la population dans 39s s'annule. Ce maser correspond à une cavité accordée au centre de la raie à deux photons. Son facteur de qualité vaut $1.3\ 10^8$ et le flux atomique $1/t_{at}$ $2(\pm 1)10^5$ at/s.

Tous les niveaux de Rydberg présents dans le jet ont été identifiés en induisant, à l'entrée ou à la sortie de la cavité, des transitions de fréquence connue vers des niveaux de Rydberg voisins.

Pour apporter la preuve définitive de l'observation d'un maser à deux photons, il fallait être capable de détecter une

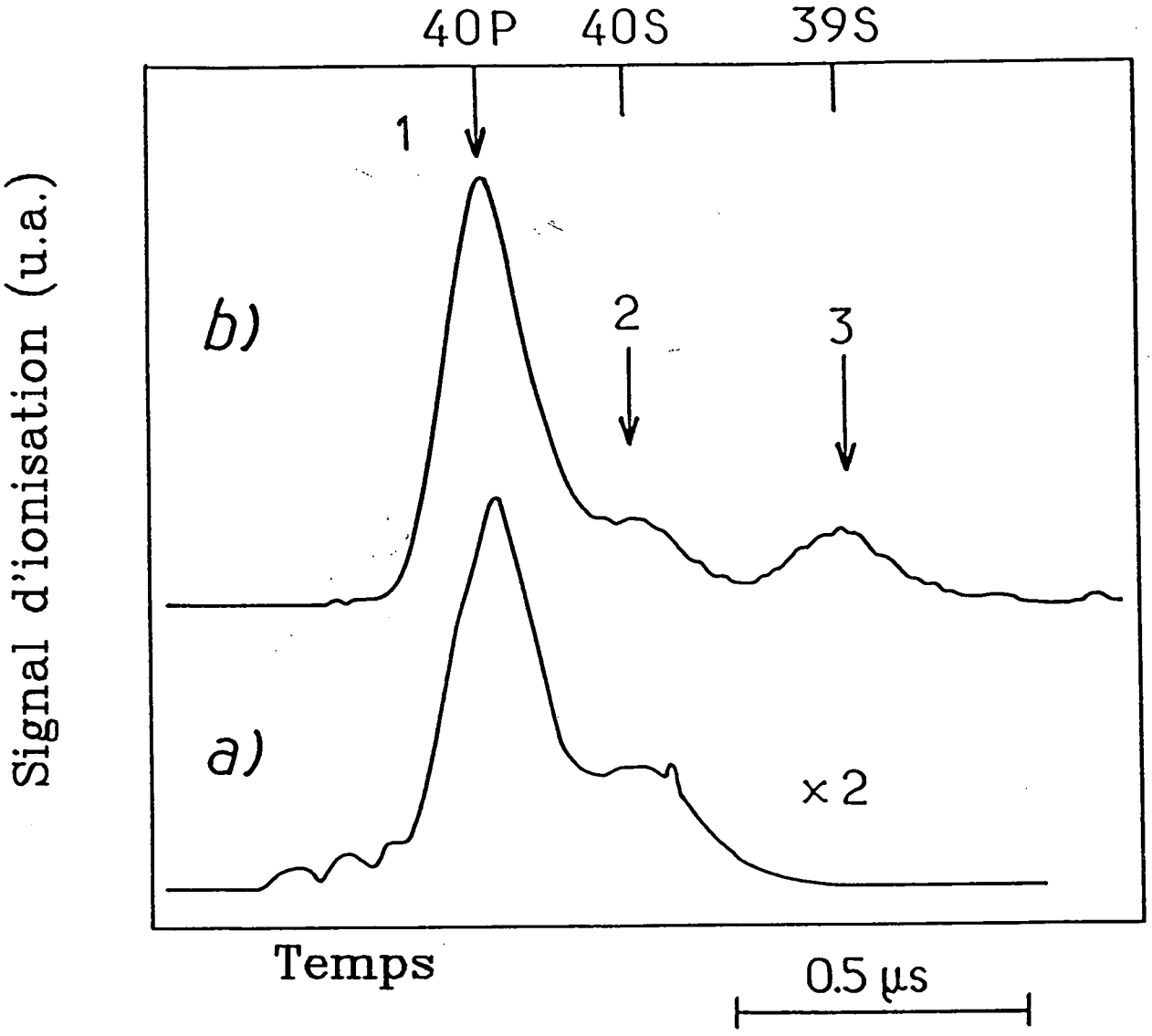
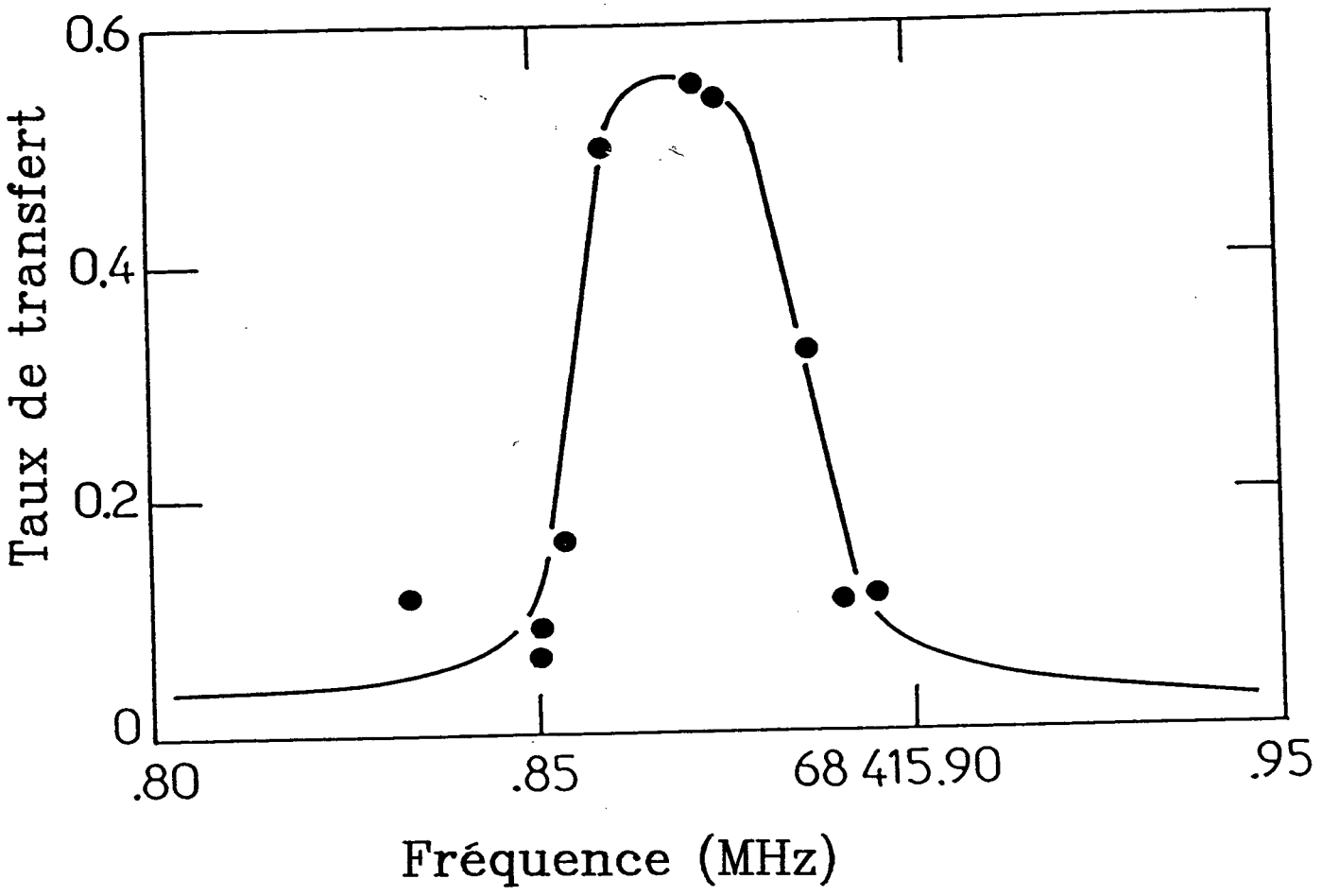


Figure I.23


0.6
0.4
0.2
0
Taux de transfert
.80
.85
68 415.90
.95
Fréquence (MHz)

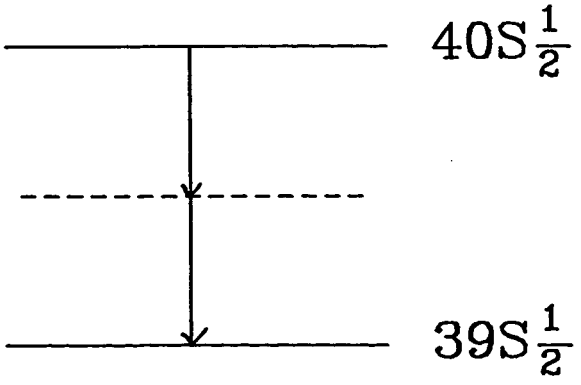

40S 1/2
39S 1/2

Figure I.24

éventuelle population dans le niveau $39p_{3/2}$. Ceci n'est pas directement possible sur le signal expérimental (Fig. I.23) car le seuil d'ionisation du niveau $39p_{3/2}$ (475 V/cm) est le même que celui de $40s_{1/2}$ si bien qu'il n'est pas possible a priori de savoir lequel des deux niveaux est peuplé. L'identification se fait par injection à la sortie de la cavité d'une microonde capable d'induire la transition $39p_{3/2} \longrightarrow 37d_{5/2}$ à 99,3 GHz. Le niveau 37d étant bien séparé des autres dans notre méthode de détection, (E_{ion} > 550 V/cm) toute population dans $39p_{3/2}$ se traduira par la présence d'atomes dans $37d_{5/2}$ au niveau de la détection. Ce test n'a montré aucune modification du signal lorsqu'on tente d'induire cette dernière transition, ce qui prouve que le niveau $39p_{3/2}$ n'est impliqué que virtuellement dans la transition à deux photons et que les effets à un photons sont inexistants.

La seconde preuve de ce dernier fait est la largeur du domaine d'accord de la cavité où l'effet maser est observé : (Fig. I.24) 20 kHz seulement, soit trois ordres de grandeur de moins que l'écart à résonance du niveau $39p_{3/2}$. Dans le cas d'effets à un photon, on s'attendrait à une largeur de l'ordre de Δ 39 MHz.

On peut aussi exclure la possibilité d'une transition déclenchée par un champ thermique : à 1,7 K il n'y a que 0,17 photon thermique dans la cavité.

La dernière hypothèse à exclure est celle d'une transition directe à un photon $40s_{1/2} \longrightarrow 39s_{1/2}$. Elle est en principe interdite mais du fait de l'existence de champs électriques parasites, les niveaux ne sont pas purs et une telle transition pourrait intervenir. L'estimation du champ électrique statique dans la cavité nous permet d'estimer la valeur de l'élément de matrice dipolaire d entre les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ perturbés par un champ électrique statique E_{stat} ($\approx$ 0,23 V/cm) :

$$d \approx \frac{E_{stat}\, d_{ei}\, d_{if}}{\hbar\, \omega_0} \approx 53 \text{ u.a} \qquad (13)$$

ce qui est très faible devant d_{ei} et d_{if}. D'autre part, à cette fréquence : 2 x 68.4 GHz 156,8 GHz, les trous de couplage de la cavité sont de véritables guides d'onde. Le facteur de qualité vaut donc 1 et il est impossible d'observer un maser à un photon dans une telle situation.

Dans les conditions d'observation du maser, nous avions en moyenne à chaque instant dans la cavité t_{int}/t_{at} 5 atomes seulement. Le nombre de photons correspondant est de l'ordre de 50 ce qui représente une puissance rayonnée de 10^{-18} W. Il ne s'agit donc pas exactement d'une nouvelle source puissante. Nous allons toutefois montrer que l'intérêt théorique que ce système est susceptible de susciter est d'autant plus grand que les paramètres qui le caractérisent (flux atomique et nombre de photons) sont plus petites. Ceci correspond en effet au régime de micromaser, dont une étude théorique détaillée est possible.

Pour qui serait déçu par la présence simultanée de 5 atomes dans le micromaser, ajoutons simplement qu'il ne semble pas exclu d'accroître le facteur de qualité de la cavité jusqu'à 10^9 (limite BCS à 1,7 Kelvin) et donc de passer en dessous de la limite psychologique d'un seul atome à la fois à chaque instant dans la cavité au seuil du maser à deux photons.

CHAPITRE II

THÉORIE SEMI-CLASSIQUE DU

MASER À DEUX PHOTONS

CHAPITRE II

THEORIE SEMI-CLASSIQUE DU MASER A DEUX PHOTONS

Nous allons montrer dans ce chapitre qu'un certain nombre des propriétés d'un oscillateur à deux photons peuvent être décrites par un modèle semi-classique très simple. Dans un tel modèle, l'évolution atomique est décrite quantiquement par le couplage dipolaire électrique entre niveaux de parités opposées soumis à l'action d'un champ électromagnétique classique. Ce champ est caractérisé par deux grandeurs seulement : sa fréquence et son amplitude ou, plutôt, le nombre moyen de photons $\bar{N}$ correspondant à cette amplitude. Cette dernière grandeur est la plus commode car elle nous permettra de faire directement le lien avec les résultats de la théorie purement quantique qui sera développée au chapitre (III).

Nous présenterons tout d'abord le calcul détaillé du processus atomique sur lequel repose notre expérience : la précession de Rabi à deux photons. Nous montrerons en particulier qu'il est possible, en introduisant un hamiltonien effectif, de se ramener à un système à deux niveaux (§ 1). Nous expliciterons alors le calcul du seuil semi-classique d'un oscillateur à deux photons (§ 2) puis nous présenterons une première étude de ses propriétés : forme de raie et calcul des différents signaux expérimentaux (§ 3), multistabilité et chaos classique (§ 4).

1) - Calcul de l'évolution atomique à deux photons

Le système atomique que nous considérons est rappelé Fig. (II.1). C'est un système à trois niveaux $|e\rangle$, $|i\rangle$ et $|f\rangle$ avec couplage dipolaire électrique entre les niveaux $|e\rangle$ et $|i\rangle$ d'une part et $|i\rangle$ et $|f\rangle$ d'autre part [D. Grischkowsky et al. 1975]. Le

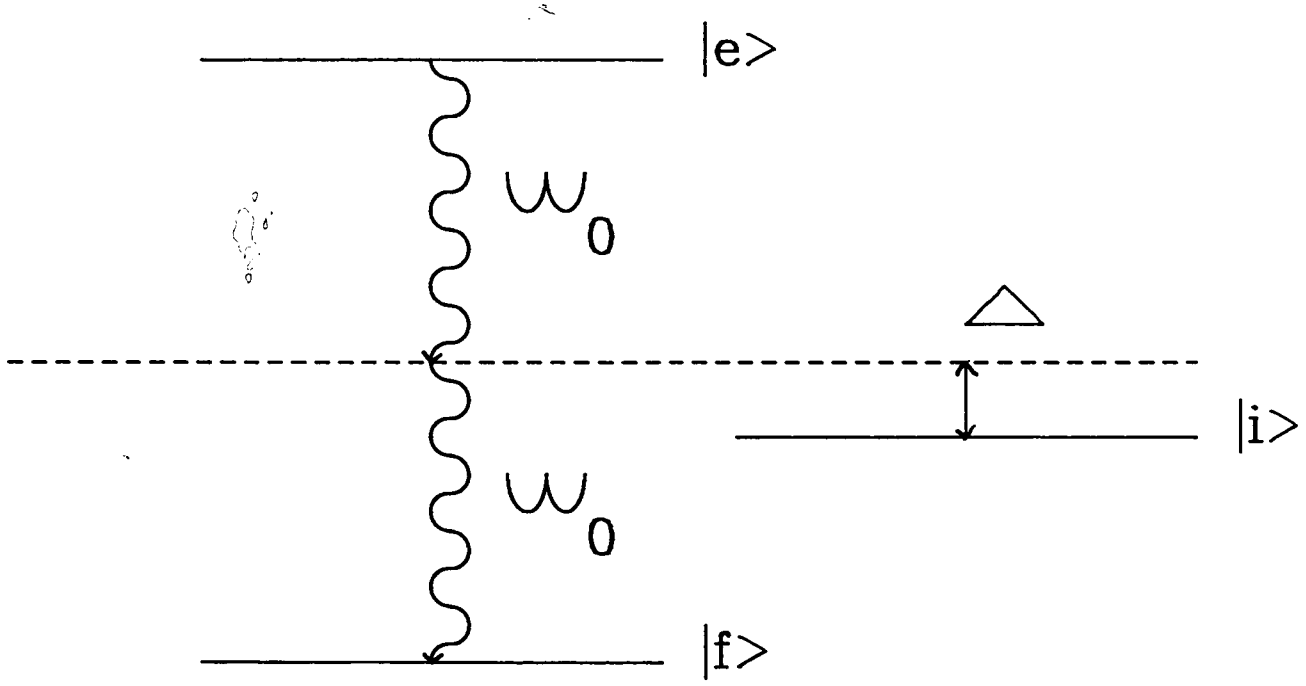


Figure II.1

paramètre essentiel est

$$\hbar\Delta = E_i - \frac{E_e + E_f}{2}$$

désaccord d'énergie entre le niveau relais $|i\rangle$ et la moyenne des énergies des niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$. $\omega_0 = (E_e - E_f)/2\hbar$ est la fréquence de la résonance à deux photons. Le calcul présenté ici est une approche perturbative du couplage apparaissant au deuxième ordre entre les deux niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique oscillant

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \qquad (1)$$

d'amplitude constante $\mathcal{E}_0$ et de fréquence $\omega = \omega_0 + \delta$ voisine de la résonance atomique ω_0.

Le hamiltonien total du système est :

$$H = H_{at} + H_{int} \qquad (2)$$

où H_{at} et H_{int} sont respectivement le hamiltonien purement atomique et le hamiltonien d'interaction avec le champ. Ceux-ci ont pour expression : (dans la base d'états ($|e\rangle$, $|i\rangle$, $|f\rangle$))

$$H_{at} = \begin{pmatrix} 2\omega_0 & 0 & 0 \\ 0 & \omega_0 + \Delta & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \qquad (3)$$

et

$$H_{int} = -d\mathcal{E}_0 (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$$

$$= \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{ei} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) & 0 \\ \Omega_{ei} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) & 0 & \Omega_{if} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \\ 0 & \Omega_{if} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) & 0 \end{pmatrix} \qquad (3')$$

où d est l'opérateur dipolaire électrique (on a pris $\hbar = 1$).

Il est alors d'usage, de faire disparaître la dépendance temporelle de H_{int}, en appliquant à l'espace des états la transformation unitaire suivante :

$$U = e^{+iSt} \quad \text{où} \quad S = \begin{pmatrix} +2\omega & 0 & 0 \\ 0 & +\omega & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{4}$$

On a alors la nouvelle expression du hamiltonien

$$\tilde{H}_{at} = U\, H_{at}\, U^{+} - S = \begin{pmatrix} -2\delta & 0 & 0 \\ 0 & (\Delta-\delta) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{5}$$

$$\text{et} \quad \tilde{H}_{int} = U\, H_{int}\, U^{+} \approx \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{ei}\sqrt{\bar{N}} & 0 \\ \Omega_{ei}\sqrt{\bar{N}} & 0 & \Omega_{if}\sqrt{\bar{N}} \\ 0 & \Omega_{if}\sqrt{\bar{N}} & 0 \end{pmatrix} \tag{6}$$

On a négligé dans (6) les termes non résonnants de l'interaction qui sont les termes évoluant à la fréquence 2ω (approximation des ondes tournantes).

Pour obtenir par la suite des expressions plus symétriques, nous décalons l'origine des énergies de δ d' où le nouvel hamiltonien total :

$$\tilde{H} = \begin{pmatrix} -\delta & \Omega_{ei}\sqrt{\bar{N}} & 0 \\ \Omega_{ei}\sqrt{\bar{N}} & \Delta & \Omega_{if}\sqrt{\bar{N}} \\ 0 & \Omega_{if}\sqrt{\bar{N}} & \delta \end{pmatrix} \tag{7}$$

dans une nouvelle base que nous continuerons à appeler $|e\rangle$, $|i\rangle$, $|f\rangle$. On sépare alors $\tilde{H}$ en deux parties :

$$\tilde{H} = \tilde{H}_0 + \tilde{W} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} -\delta & \Omega_{ei}\sqrt{\bar{N}} & 0 \\ \Omega_{ei}\sqrt{\bar{N}} & 0 & \Omega_{if}\sqrt{\bar{N}} \\ 0 & \Omega_{if}\sqrt{\bar{N}} & \delta \end{pmatrix} \qquad (8)$$

$\tilde{H}_0$ est diagonal dans notre base et nous traitons $\tilde{W}$ comme une perturbation de $\tilde{H}_0$. Ce calcul sera donc valable dans le cas où le désaccord δ et les couplages à un photon $\Omega_{ei}\sqrt{\bar{N}}$ et $\Omega_{if}\sqrt{\bar{N}}$ sont suffisamment faibles par rapport à $|\Delta|$. Ceci revient à dire que $|\Delta - \delta|$ est suffisamment grand pour que le champ de pulsation ω soit hors de la largeur des résonances à un photon. L'expression des vecteurs propres de $\tilde{H}$ au premier ordre en $\tilde{W}$ est alors :

$$\begin{cases} |e\rangle_1 = |e\rangle - \dfrac{\Omega_{ei}}{\Delta}|i\rangle \\ |f\rangle_1 = |f\rangle - \dfrac{\Omega_{if}}{\Delta}|i\rangle \\ |i\rangle_1 = |i\rangle + \dfrac{\Omega_{ei}}{\Delta}|e\rangle + \dfrac{\Omega_{if}}{\Delta}|f\rangle \end{cases} \qquad (9)$$

Les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ sont "contaminés" par le niveau $|i\rangle$ ce qui conduit à un couplage au second ordre entre les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$. Le hamiltonien de couplage effectif au second ordre entre ces deux niveaux est :

$$V = \begin{pmatrix} -\delta - \dfrac{\Omega_{ei}^2 \bar{N}}{\Delta} & -\dfrac{\Omega_{ei}\Omega_{if}\bar{N}}{\Delta} \\ -\dfrac{\Omega_{ei}\Omega_{if}\bar{N}}{\Delta} & \delta - \dfrac{\Omega_{if}^2 \bar{N}}{\Delta} \end{pmatrix} \qquad (10)$$

Le couplage à deux photons correspond à l'élément de matrice non diagonal de W. Sur la diagonale, des termes du même ordre que ce couplage s'ajoutent au désaccord δ. Ils représentent

les déplacements Stark dynamiques des niveaux |e> et |f> induits par le champ oscillant dans la cavité [M. Takatsuji 1975, H.I. Yoo et al. 1985, M. Brune et al. 1987].

La valeur du déplacement de la raie à deux photons est cependant un effet faible car ce n'est qu'un effet différentiel entre les déplacements de chacun des niveaux |e> et |f>. Ceux-ci sont déplacés dans le même sens, vers les énergies atomiques plus élevées (car Δ est négatif). En pratique on a :

$$\Delta\omega_0 = \frac{-\Omega_{ie}^2 + \Omega_{if}^2}{\Delta} = -147\ \bar{N}\ \text{rad/s} \qquad (11)$$

ce qui correspond à un déplacement de 23 Hz par photon.

Comme nous considérons une situation où la largeur de raie vaut 40 kHz et où le champ contient environ 40 photons, cet effet est négligeable. Sa prise en compte est aisée mais alourdirait inutilement les calculs. Dans toute la suite de ce chapitre nous considérons donc que

$$\Omega_{ei} \approx \Omega_{if} \approx \Omega_1$$

La constante de couplage à deux photons est alors $\Omega_2 = \frac{-\Omega_1^2}{\Delta}$ et on a :

$$V = \begin{pmatrix} -\delta & \Omega_2 \bar{N} \\ \Omega_2 \bar{N} & \delta \end{pmatrix} \qquad (12)$$

La diagonalisation de V est immédiate. Les valeurs propres sont :

$$\pm \sqrt{\delta^2 + \Omega_2^2 \bar{N}^2} \qquad (13)$$

A résonance $\delta = 0$ et la valeur de la pulsation de Rabi à deux photons est :

$$\Omega_{2\varphi}(\bar{N}) = 2\,\Omega_2 .\bar{N} \qquad (13')$$

Les vecteurs propres (à l'ordre 0 en $\frac{\Omega_1}{\Delta}$) sont :

$$\begin{cases} |+\rangle = \dfrac{\Omega_2 \bar{N}}{K}\,|e\rangle + \dfrac{\delta + \sqrt{\delta^2+\Omega_2^2\bar{N}^2}}{K}\,|f\rangle = \alpha\,|e\rangle + \beta\,|f\rangle \\ |-\rangle = \beta\,|e\rangle - \alpha\,|f\rangle \end{cases} \qquad (14)$$

avec

$$K = \sqrt{2}\,\left[\delta^2+\Omega_2^2\bar{N}^2 + \delta\sqrt{\delta^2+\Omega_2^2\bar{N}^2}\right]^{1/2} \qquad (15)$$

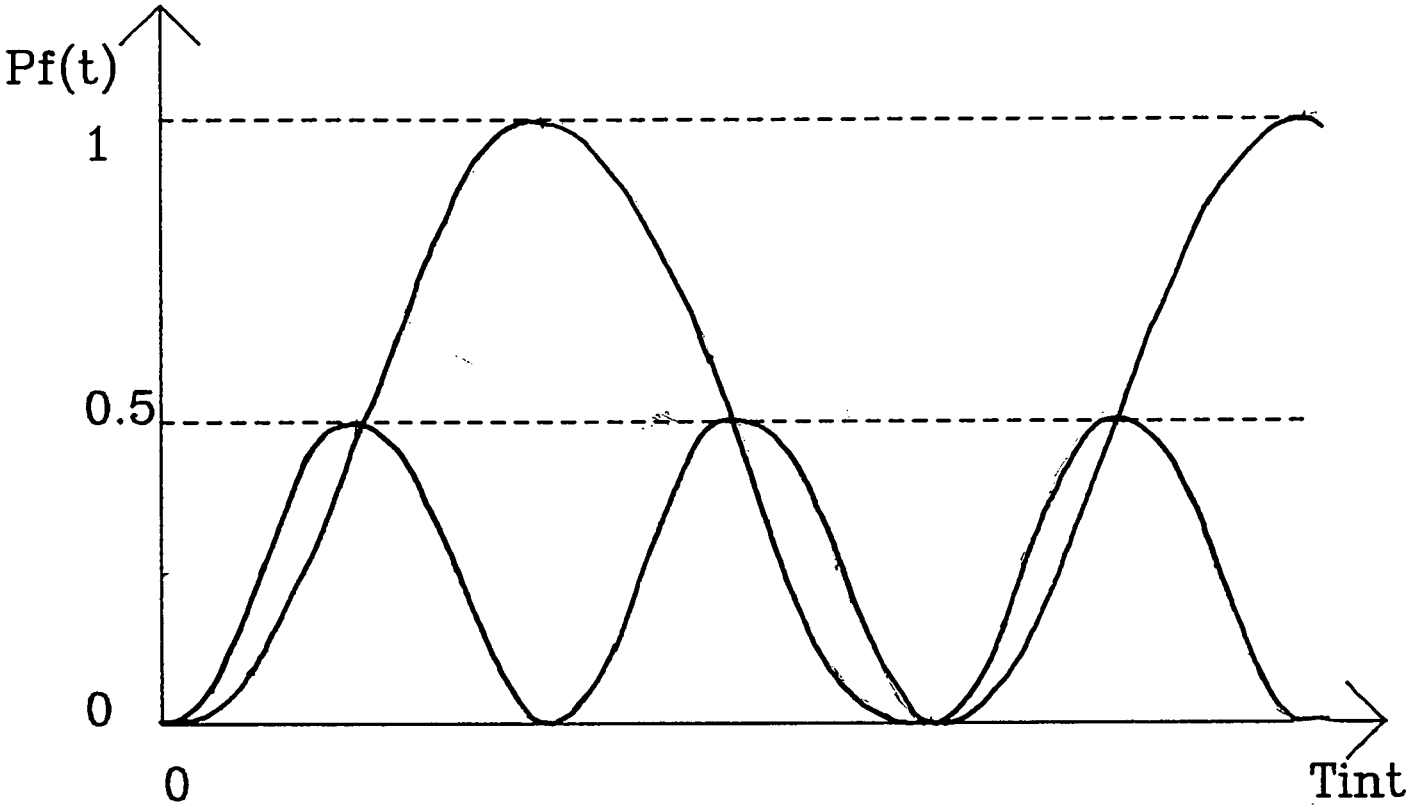
Considérons maintenant un atome dans l'état $|e\rangle$ à $t = 0$. La probabilité de trouver l'atome dans l'état $|f\rangle$ en fonction du temps vaut alors :

$$P_f(t) = \frac{1}{2}\,[1-(\alpha^2-\beta^2)^2][1-\cos(2\sqrt{\delta^2+\Omega_2^2\bar{N}^2}\,.t)]$$

$$= f(u)\,\frac{1-\cos(2\sqrt{\delta^2+\Omega_2^2\bar{N}^2}\,.t)}{2} \qquad (16)$$

$$\text{où} \quad u = \frac{\delta}{\bar{N}\Omega_2} \quad \text{et} \quad f(u) = \frac{4(u+\sqrt{1+u^2})^2}{(1+(u+\sqrt{1+u^2})^2)^2}. \qquad (17)$$

C'est l'expression de la précession de Rabi à deux photons dans un champ de $\bar{N}$ photons désaccordé de δ par rapport à résonance. La variation de $P_f(t)$ lorsque le temps d'interaction varie à $\bar{N}$ fixé est représentée Fig. (II.2.a) pour différentes valeurs de δ. L'effet du désaccord est d'augmenter la pulsation de Rabi et de diminuer l'amplitude des oscillations. Cette amplitude Fig. (II.2.b) fixe la largeur de la raie à deux photons en fonction de $\bar{N}$: $\delta \approx \bar{N}\,\Omega_2$.



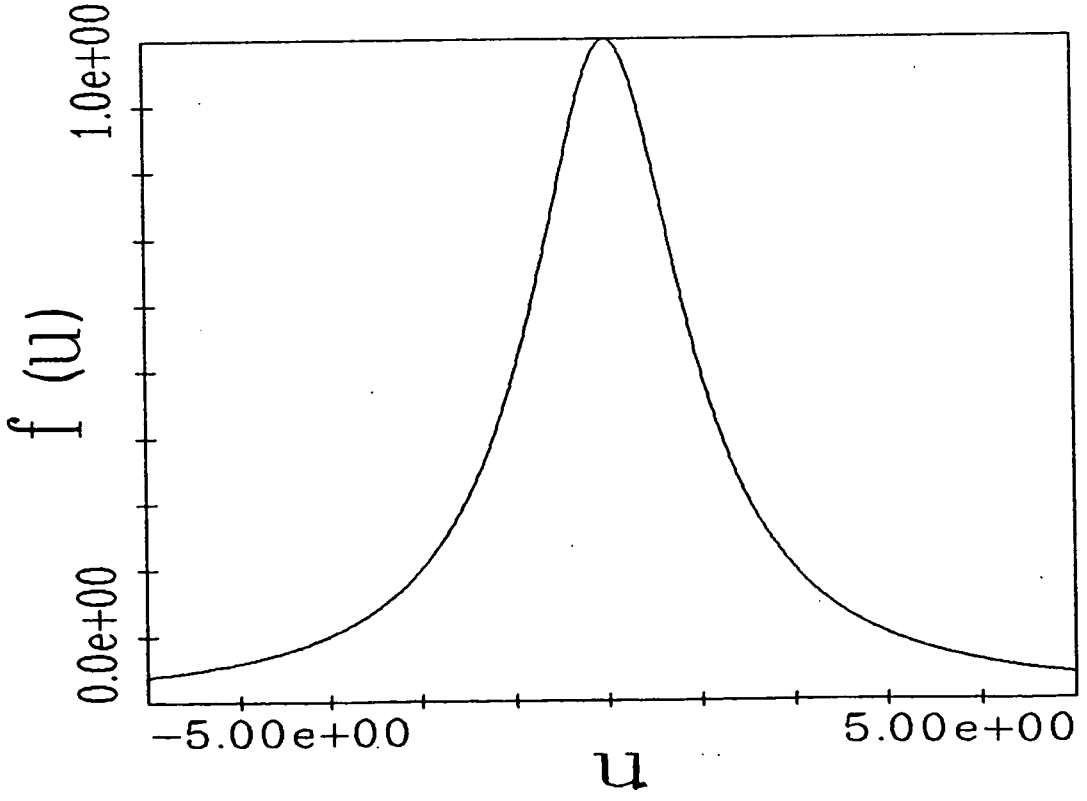


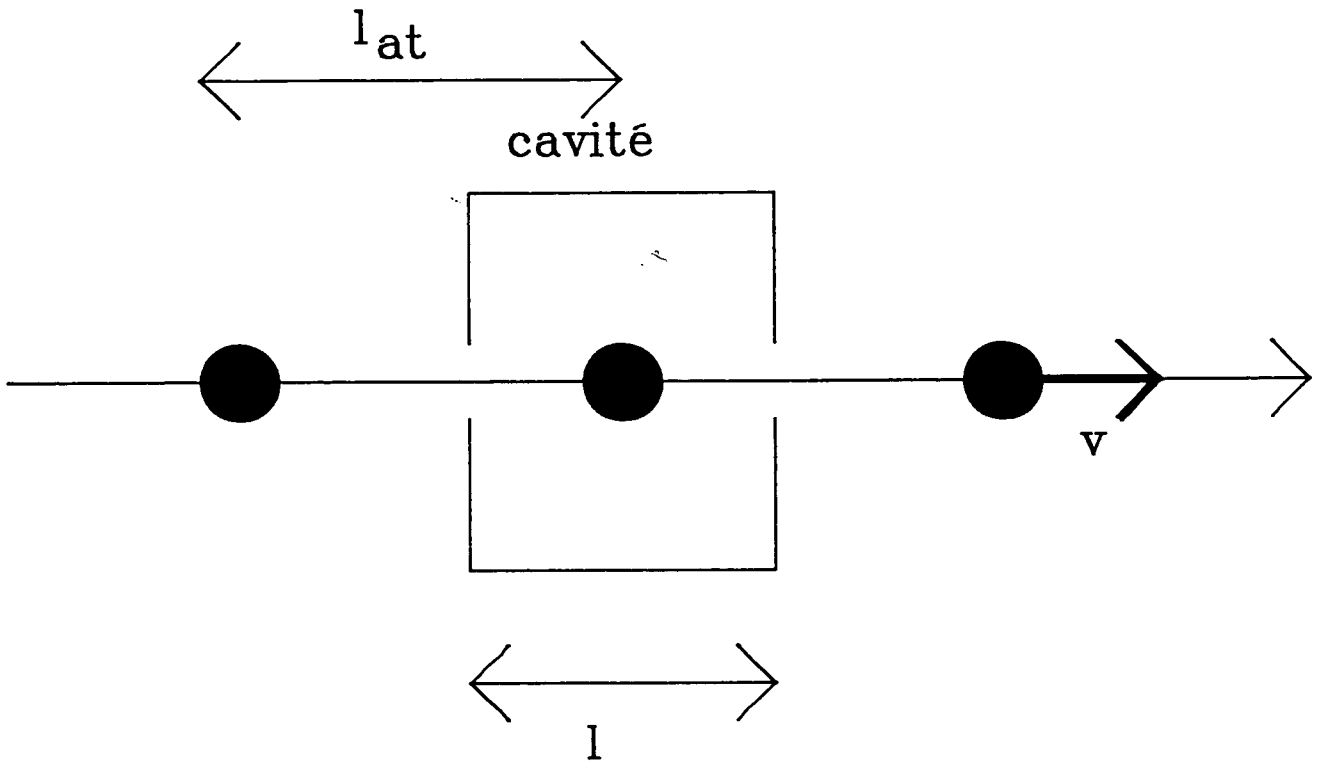
Figure II.2

Le point essentiel à souligner en dernier lieu est l'élimination du niveau |i> dans la description finale de l'interaction à deux photons en terme d'oscillations de Rabi entre les niveaux |e> et |f>. Nous nous sommes en effet ramenés à un simple système à deux niveaux couplés [D. Grischkowsky et al. 1975, M. Takatsuji 1975]. Le niveau relais n'apparaît pas comme directement impliqué dans le processus à deux photons : lors de l'évolution atomique sa population reste constamment nulle. C'est là une des caractéristiques essentielle d'un processus à deux photons : un niveau relais est nécessaire pour permettre la transition, mais grâce à son désaccord en énergie, aucune transition réelle vers ce niveau ne peut être induite par le champ. Grâce à cette propriété on peut distinguer expérimentalement un pur effet à deux photons de deux transitions à un photon se produisant simultanément, processus du premier ordre dans lequel une part importante des atomes se trouve réellement dans l'état |i>.

Ceci n'est vrai qu'à l'ordre 0 en $\Omega_1\sqrt{\bar{N}}/\Delta$. C'est dans notre cas une très bonne approximation. Les termes négligés sont de faible amplitude ($\sim 2.10^{-2}$ pour $\bar{N} = 40$) et oscillent rapidement, à une fréquence de l'ordre de Δ. Ceci les rend doublement négligeables puisqu'ils se moyennent à zéro avec une constante de temps courte devant le temps caractéristique de l'évolution à deux photons $1/(\Omega_2.\bar{N})$.

2) - <u>Calcul du seuil du maser</u>

Nous allons calculer la fraction d'énergie cédée au champ en moyenne par un atome lors de son interaction, en tenant compte de tous les facteurs intervenant en pratique dans ce processus. Nous ferons ensuite un simple bilan des gains et des pertes pour le champ du maser. Nous calculerons alors précisément la valeur du seuil d'oscillation.



$t_{at} = l_{at} / v$

$t_{int} = l / v$

$t_{cav} = Q / \omega$

Micromaser: $t_{at} > t_{int}$

Figure II.3

a) - Eléments du modèle

Le calcul de l'évolution atomique repose sur deux hypothèses : nous négligeons à la fois les effets collectifs qui pourraient intervenir dans cette évolution et la variation temporelle de l'amplitude moyenne du champ durant le temps d'interaction d'un atome. Dans un véritable régime de micromaser, qui correspond à l'interaction à chaque instant d'un atome au plus avec le champ (Fig. II.3), cette première hypothèse est exacte. Dans les conditions expérimentales, plusieurs atomes traversent en même temps la cavité. Le processus d'émission à deux photons étant décrit par un système à deux niveaux couplé à un mode du champ, il pourrait donner lieu aux mêmes effets collectifs que ceux que l'on peut observer avec une collection de N atomes à deux niveaux capables d'émettre chacun un photon. Un traitement rigoureux nécessiterait l'introduction d'une description des N atomes par une fonction d'onde collective (états de Dicke) qui permettrait par exemple de décrire le phénomène de superradiance(*) à deux photons.

(*) Dans le cas d'un micromaser fonctionnant en continu, il n'y a pas de description analytique simple de ces effets car les atomes entrent et sortent en permanence dans le système et ce de façon aléatoire. On peut cependant raisonnablement penser que ces effets seront négligeables : nous avons peu d'atomes à la fois (4 ou 5) et de toute façon, la seconde approximation sur laquelle notre calcul repose exclut toute évolution temporelle notable de l'amplitude du champ pendant le temps d'interaction. Ceci est justifié par le fait que ce temps ($\sim$ 20 μs) est très bref par rapport au temps d'évolution du champ qui vaut $t_{cav} \approx 400$ μs. Cette approximation est sans doute très bonne tant qu'il s'agit de décrire les propriétés du maser en régime stationnaire. Elle risque par contre d'être moins bien adaptée à la description d'effets dynamiques dans des situations où le nombre de photons dans le maser est petit par rapport aux 2n photons que les n atomes du maser sont susceptibles d'émettre. La description de champs aussi faibles sort de toute façon du cadre d'un traitement classique du champ.

Trois effets doivent être maintenant pris en compte dans le calcul du gain à partir du hamiltonien de couplage effectif V (expression 16). Il va falloir d'abord recalculer $P_f(t)$ (expression 16) en tenant compte de la variation spatiale de l'amplitude du champ lors de la traversée de la cavité. Cette variation est donnée par la structure spatiale du mode le long de l'axe de la cavité (Fig. I.6.a). Ceci revient à introduire un couplage atome-champ dépendant du temps pour le calcul de l'angle de Rabi après interaction. Nous devrons ensuite prendre en compte la dispersion des temps d'interaction des différents atomes. La cause de cet effet est double : d'une part, la distribution maxwellienne de vitesses des atomes entraîne une large dispersion des temps d'interaction. D'autre part, il faut prendre en compte la durée de vie finie des niveaux de Rydberg : un grand nombre d'atomes se désexcitent en cours d'évolution, ce qui a pour effet de raccourcir le temps d'interaction moyen d'un atome.

b) - Calcul du gain atomique

• Effet de la structure du mode de la cavité

L'amplitude du champ le long de l'axe de la cavité a, nous l'avons vu, la forme d'une arche de sinusoïde :

$$\mathcal{E}(z) = \mathcal{E}_0 \sin \frac{\pi z}{L} \qquad (18)$$

où l'axe z est l'axe de la cavité.

Les atomes traversant la cavité selon son axe, ils "voient" un champ d'amplitude variable et l'évolution se fait avec une constante de couplage dépendant du temps dont l'expression vaut : (pour un atome de vitesse v)

$$\Omega_2(t) = \Omega_2 \sin^2 \frac{\pi v t}{L} \qquad (19)$$

Cet effet, lié à la structure même du mode du champ ne doit pas être confondu avec l'évolution temporelle globale de

l'amplitude moyenne du champ à l'échelle de l'ensemble de la cavité que nous négligeons pendant l'interaction d'un atome.

L'effet de ce couplage variable est très simple pour les atomes qui traversent complètement la cavité, c'est-à-dire dont le temps d'interaction vaut $t_{int}(v) = L/v$. Il suffit de prendre pour valeur du coefficient de couplage sa moyenne pendant la traversée qui vaut $\Omega'_2 = \langle\Omega_2(z)\rangle = \Omega_2/2$ et qui ne dépend plus de la vitesse. Cette correction d'un facteur deux est parfaitement confirmé par une intégration numérique directe des équations d'évolution du système à deux niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$.

Nous allons cependant devoir aussi considérer les atomes qui, du fait de leur durée de vie finie, se désexcitent en cours d'interaction. Nous verrons dans le paragraphe suivant que la prise en compte de ces atomes nécessite l'expression de la précession de Rabi en fonction du temps pendant la traversée de la cavité. Cette expression est obtenue par intégration numérique de l'équation de Schrödinger qui décrit l'évolution des niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ sous l'effet du couplage V (expression 12). Pour un atome de vitesse v entrant dans la cavité dans l'état $|e\rangle$ à l'instant $t = 0$, nous appellerons $P_f(t,v)$ la probabilité de trouver cet atome dans l'état $|f\rangle$ à l'instant t.

• <u>Effet de la durée de vie</u>

Précisons tout d'abord que la durée de vie de nos états de Rydberg est essentiellement liée au taux d'émission spontanée vers les niveaux profonds de l'atome. Il s'agit donc de transitions dans le domaine optique pour lesquelles la cavité microonde ne joue aucun rôle ni d'inhibition ni d'accélération. La durée de vie d'un atome de Rydberg dans le maser est donc la même que sa durée de vie dans le vide.

D'autre part, nous n'avons à introduire ici qu'une seule durée de vie pour les deux niveaux 40s et 39s car les deux valeurs sont très voisines. En effet, le taux d'émission spontanée d'un état de Rydberg varie comme n^{-3} (n étant le nombre quantique

principal). On a alors une différence de seulement 3 μs sur les durées de vie des deux niveaux 40s et 39s qui valent respectivement 37,5 et 34,5 μs.

La prise en compte de la désexcitation d'un atome de Rydberg à l'instant t par émission spontanée se fait alors de façon élémentaire : un tel atome peut céder deux photons avec la probabilité $P_f(t,v)$ (calculée au paragraphe précédent), et la probabilité pour un atome de disparaître entre les instants t et t + dt vaut $1/\tau\ e^{-t/\tau}\ dt$. On en déduit le nombre $\bar{n}$ de photons fournis en moyenne par un atome entrant dans la cavité avec la vitesse v :

$$\bar{n}(v) = 2 \int_0^{\frac{L}{v}} P_f(t,v)\ e^{-t/\tau}\ \frac{dt}{\tau} \qquad (20)$$

• <u>Effet de la dispersion des vitesses atomiques</u>

Nous utilisons un jet atomique thermique. La distribution des vitesses au niveau de la zone d'excitation laser est donc décrite par la distribution de Maxwell :

$$P(v) = cste.v^3 .\ e^{-\frac{mv^2}{2KT}}$$

m est la masse d'un atome et K la constante de Boltzman. P(v)dv est le flux d'atomes dont la vitesse est comprise entre v et v+dv.

Les deux premiers échelons de l'excitation laser étant saturants, on a la même distribution de vitesses dans le niveau $5d_{5/2}$ que dans le fondamental. Par contre le troisième laser est très loin de la puissance de saturation (10^{-3} environ), son efficacité est donc proportionnelle au temps d'interaction d'un atome avec ce laser. La distribution de vitesses des niveaux de Rydberg est donc différente de P(v) par un facteur 1/v d'où la distribution :

$$P_{Ry}(v) = \text{cste}.v^2 . e^{-\frac{mv^2}{2KT}} \qquad (21)$$

Le quatrième échelon 40p ⟶ 40s, facile à saturer, grâce à la grande valeur de l'élément de matrice dipolaire, ne modifie pas cette distribution qui est donc celle des atomes du niveau 40s juste après excitation. On trouve alors de façon évidente que le nombre moyen de photons cédés par un atome quelconque préparé dans l'état |e> vaut :

$$\bar{n}(\bar{N},\delta) = \frac{1}{C}\int_0^\infty dv.P_{Ry}(v).e^{-\frac{l_0}{v\tau}}.\bar{n}(v) \qquad (22)$$

Le facteur $e^{-l_0/v\tau}$ correspond à la perte d'atomes par émission spontanée durant le vol libre sur la distance l_0 qui sépare la zone de préparation atomique de l'entrée de la cavité. Il déplace légèrement la distribution de vitesse vers les grandes valeurs de v. $\bar{n}(v)$ est donné par (20). C est une constante de normalisation :

$$C = \int_0^\infty P_{Ry}(v)\ e^{-l_0/vt}\ dv \qquad (23)$$

La valeur finale du gain $\bar{n}$, produit en moyenne par un atome, n'est plus ici fonction que du nombre moyen de photons $\bar{N}$ et du désaccord δ entre la fréquence du champ et celle de la transition à deux photons. On constate que, pour $\delta = 0$ (Fig. II.4), l'effet de la dispersion des temps d'interaction est de brouiller les oscillations de Rabi en fonction de $\bar{N}$ (la première oscillation reste cependant visible). Dans le maser réalisé, le maximum du taux de transfert correspond à $\bar{N} \approx 50$. Pour des valeurs plus fortes de $\bar{N}$, l'effet moyen de l'évolution à deux photons n'est plus qu'une égalisation des populations des niveaux |e> et |f>. Pour des valeurs beaucoup plus fortes de $\bar{N}$ il faudrait tenir compte en plus du déplacement de la raie dû aux effets Stark dynamiques, négligés ici et qui ont pour effet de réduire le taux de transfert lorsque $\bar{N}$ augmente à $\delta = 0$.

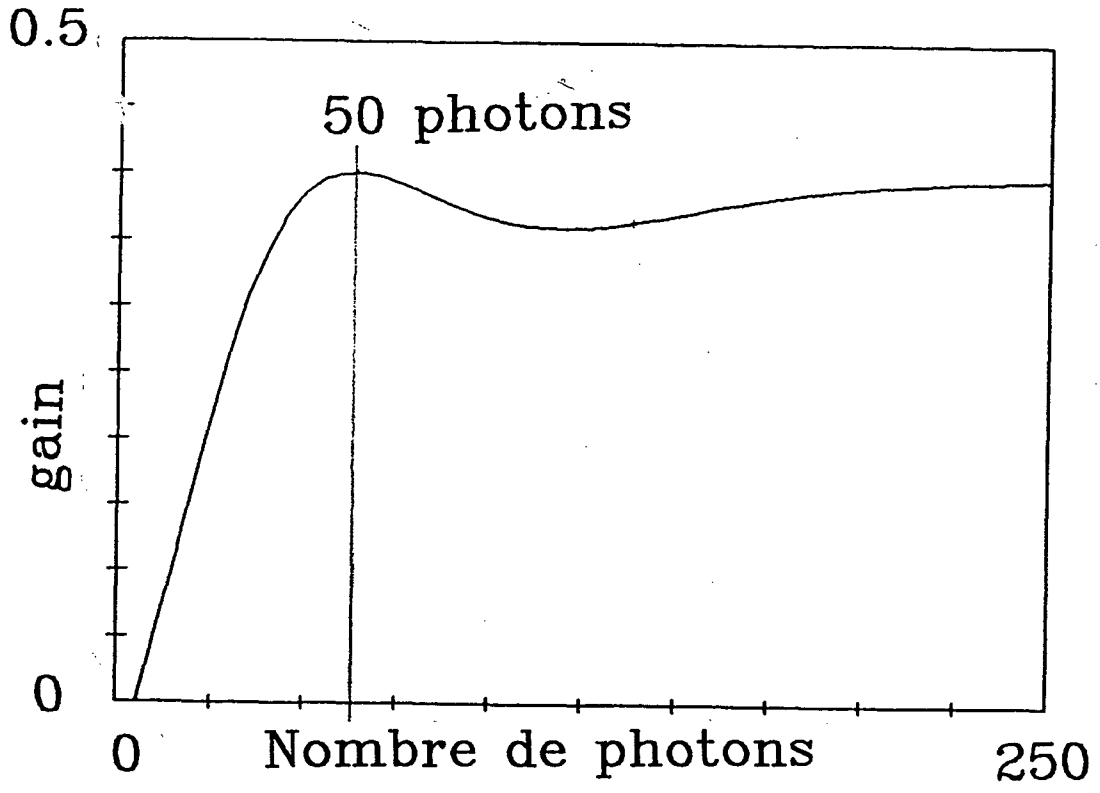


Figure II.4

L'expression du gain atomique est maintenant de façon évidente :

$$\left.\frac{d\bar{N}}{dt}\right|_{at} = \frac{\bar{n}(\bar{N},\delta)}{t_{at}} \qquad (24)$$

où $1/t_{at}$ est le nombre d'atomes préparés par seconde dans l'état $|e\rangle$ au niveau de l'excitation.

c) - Calcul du seuil d'oscillation

L'équation d'évolution du nombre de photons dans la cavité est maintenant :

$$\frac{d\bar{N}}{dt} = -\frac{\bar{N}}{t_{cav}} + \frac{\bar{n}(\bar{N},\delta)}{t_{at}} \qquad (25)$$

où t_{cav} est le taux d'amortissement du champ et t_{at} le flux atomique à l'entrée de la cavité. Les points de fonctionnement possibles du maser sont les solutions stationnaires stables de cette équation. Elles sont déterminées par l'équation $(d\bar{N}/dt) = 0$ dont la résolution est présentée sous forme graphique figure (II.5) dans le cas résonnant ($\delta = 0$). Il est plus commode pour la discussion de comparer $\bar{n}$ à $(t_{at}/t_{cav})\bar{N}$, plutôt que de parler directement du gain et des pertes. Ainsi, les solutions apparaissent comme les valeurs de $\bar{N}$ pour lesquelles la droite de pente t_{at}/t_{cav}, que nous appellerons par abus de langage "droite des pertes", coupe la "courbe des gains" $\bar{n}(\bar{N},\delta)$.

Faisons croître le flux atomique $1/t_{at}$ à partir de zéro. La pente de la droite de pertes, infinie au départ, devient alors de plus en plus faible si bien que pour une valeur critique $(1/t_{at})_0$ du flux, elle vient tangenter la courbe de gain (droite b). Tant que le flux atomique était inférieur à cette valeur (droite a), le seul point de fonctionnement stationnaire du maser

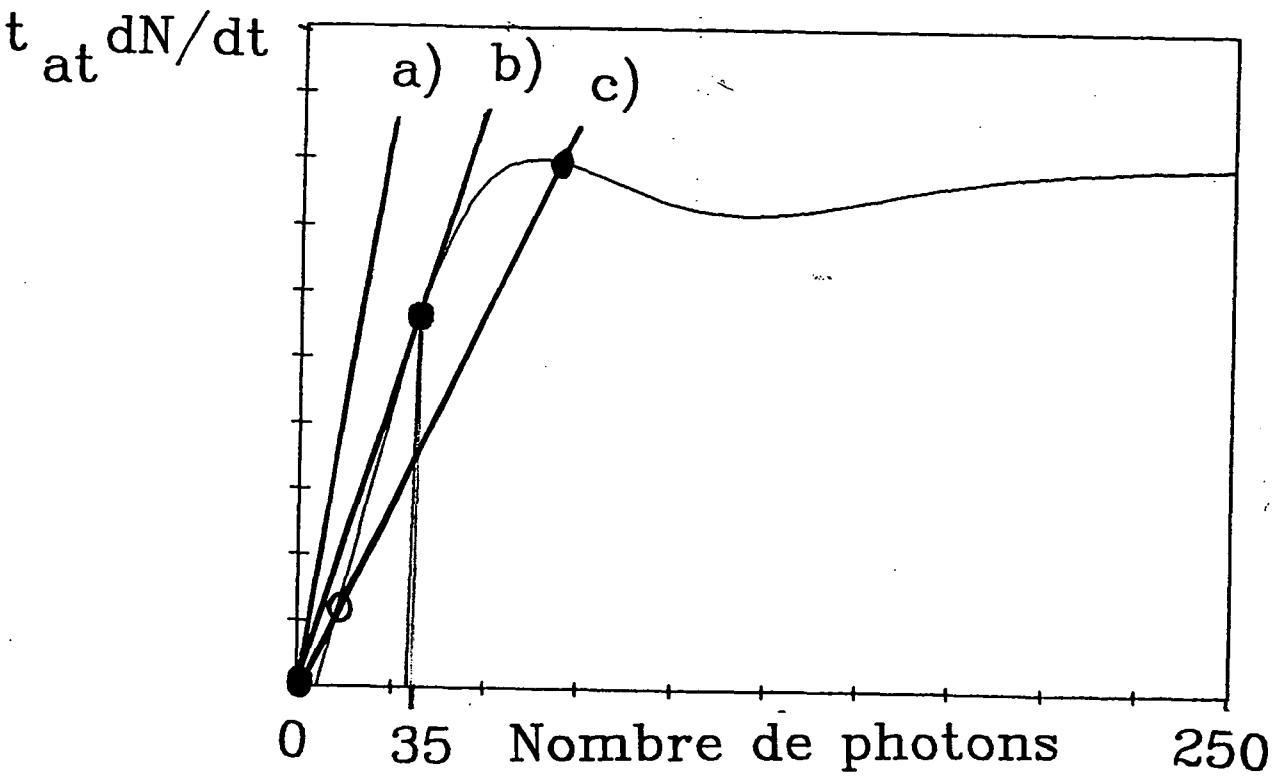
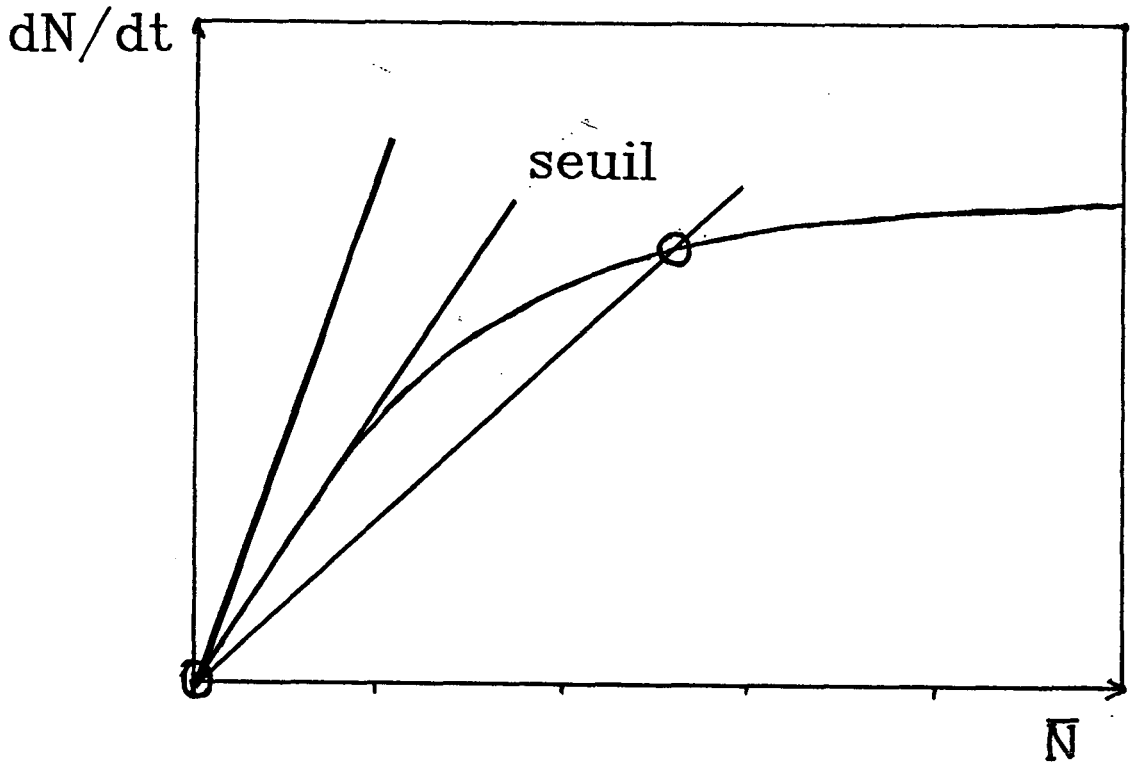


Figure II.5



maser (laser) à un photon

Figure II.6

était $\bar{N} = 0$ que nous appelerons "état maser éteint". Par contre, dès que le taux de pompage dépasse $(1/t_{at})_0$ on a trois intersections entre les courbes de gain et de pertes (droite c). Les seules solutions qui nous intéressent sont les points de fonctionnement stable qui sont ceux où la dérivée des pertes est supérieure à celle du gain. On a donc une solution instable (N_1) et deux solutions stables (0 et N_2). L'essentiel est que, dès que le seuil $(1/T_{at})_0$ est dépassé, il est possible d'observer une oscillation continue du maser. La valeur de ce seuil est $t_{at}/t_{cav} = 1/57$. Pour un facteur de qualité de $1.3\ 10^8$, ceci correspond à $1,88.10^5$ at/s à l'entrée de la cavité. On a alors 3.5 atomes et 35 photons présents en moyenne à chaque instant dans la cavité, c'est un micromaser.

d) - Comparaison semi-classique des masers (lasers) ordinaires et des masers (lasers) à deux photons

Nous sommes dès à présent capables de mettre le doigt sur une différence essentielle entre oscillateurs fonctionnant sur des transitions à 1 ou 2 photons.

Dans le cas d'un laser ordinaire, le gain en champ nul ($\bar{N} = 0$) est linéaire en intensité du champ (Fig. II.6). Cela a deux conséquences : l'état éteint est un point de fonctionnement instable dès que le seuil est atteint et lorsqu'on passe le seuil, le nombre de photons dans l'oscillateur varie continuement à partir de 0. On peut montrer que ce passage du seuil présente toutes les caractéristiques d'une transition de phase continue, du second ordre [Z.C. Wang et al. 1984].

Dans le cas à deux photons, il en va tout autrement : nous avons déjà constaté que ce maser au-dessus du seuil était bistable : l'état maser éteint reste toujours stable. Cette propriété a deux conséquences pour la dynamique d'un oscillateur à deux photons [N. Mayak et al. 1979, T. Hoshimiya et al. 1978, Z.C. Wang et al. 1984]. Tout d'abord, le point de fonctionnement d'une réalisation particulière du maser dépend de la condition

initiale imposée au champ. Si on part d'un maser éteint, il ne démarrera jamais : l'injection d'un champ de déclenchement est nécessaire à l'obtention d'une oscillation. Par ailleurs, on ne peut passer sans discontinuité sur $\bar{N}$ de l'état éteint à l'état allumé : si l'on part d'un maser oscillant au-dessus du seuil et que l'on réduit progressivement le taux de pompage (Fig. II.7), le nombre de photons présents dans le maser diminue d'abord continuement puis chute brutalement à 0 lorsqu'on passe au-dessous du seuil. Cette propriété permet, dans le cadre d'une théorie d'auto-organisation développée par Haken [Z.C. Wang et al. 1984, Haken 1983], de faire apparaître le passage du seuil d'un oscillateur à deux photons comme une transition de phase du premier ordre. Cela va avoir des conséquences importantes sur la dynamique des oscillateurs à deux photons. Celle-ci est beaucoup plus riche que celle des lasers ordinaires : par exemple, l'état stationnaire atteint dépend de la condition initiale imposée au champ.

On est alors amené à ressentir un certain trouble lorsqu'on se souvient que, dans le cas du maser présenté au chapitre (I), l'oscillation obtenue était instantannée et qu'aucun champ de déclenchement n'était présent. Ce trouble ne sera dissipé qu'au chapitre (III) où, ayant pleinement pris conscience des propriétés à la fois quantiques et microscopiques du micromaser, nous montrerons que les réticences au démarrage d'un oscillateur à deux photons ne résistent pas à la prise en compte des diverses sources de fluctuations existant dans notre système : émission spontanée à deux photons et fluctuations du nombre d'atomes présents dans la cavité. Nous constaterons alors cependant que dans le cas d'un oscillateur macroscopique, on retrouve bien les résultats semi-classiques.

Avant de passer à la théorie quantique, nous allons nous attarder encore un peu sur le modèle semi-classique car il permet de prévoir quantitativement un certain nombre de résultats expérimentaux : variation du taux de transfert en fonction du nombre de photons, forme de la raie à deux photons, ou encore forme de la raie du maser. Il permet aussi de prédire la possibilité de multistabilité et de chaos dans cet oscillateur.

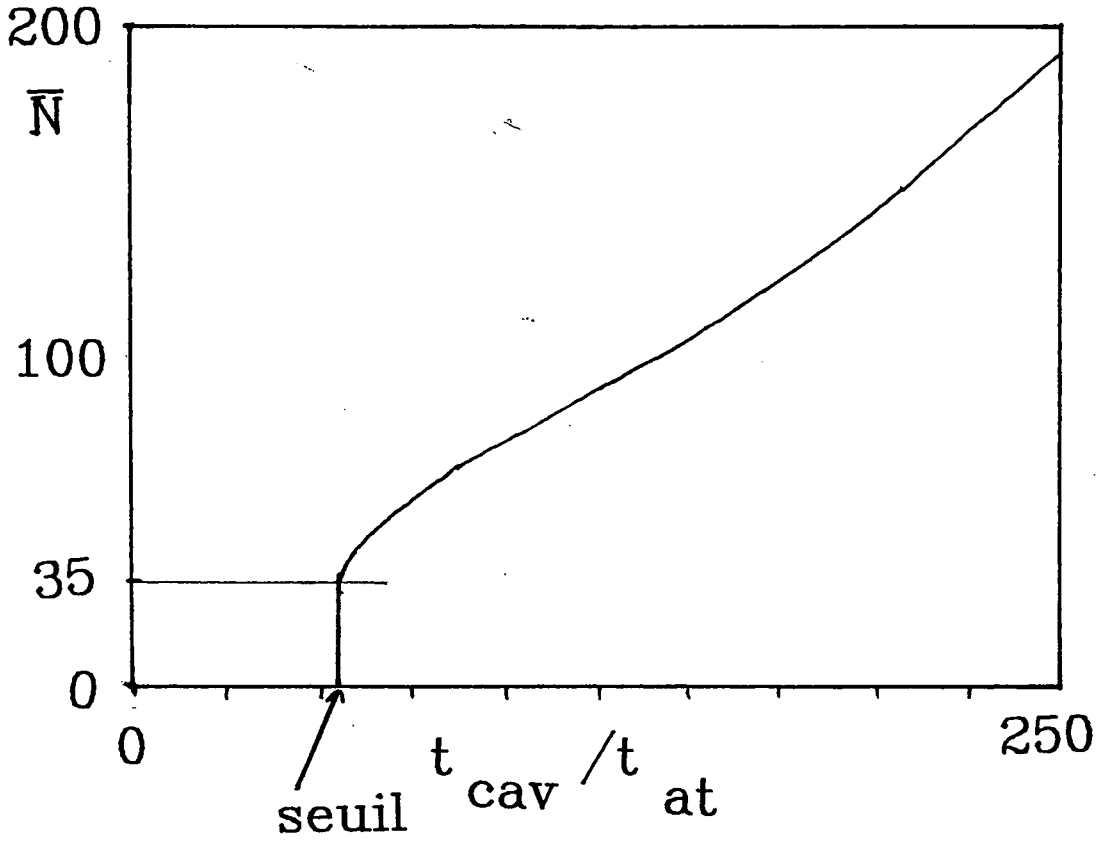


Figure II.7

3) - Etude de la transition à deux photons induite par un champ extérieur

Nous disposons de tous les éléments nécessaires au calcul du signal atomique mesuré lors de l'expérience de spectroscopie : mesure du taux de transfert atomique en fonction de la fréquence du champ d'une part et de son intensité d'autre part.

Le principe du calcul de ces signaux est identique à celui du gain dans le maser. La seule différence est que nous n'avons plus à prendre en compte ici les effets de durée de vie finie des niveaux : les atomes détectés ont nécessairement "survécu" jusqu'à la détection , on sait donc que, pour une classe de vitesse donnée, ils ont tous évolué pendant le même temps $t_{int} = L/v$.

Le seul effet de durée de vie subsistant est une diminution d'un facteur (1/13) de la population totale détectable par rapport au flux au niveau de la cavité, ainsi qu'une légère déformation de la distribution de vitesses au niveau de la détection (vers les grandes valeurs de v).

La probabilité de détecter expérimentalement un atome dans l'état |f> vaut d'après (16) :

$$P_f(\bar{N},\delta) = \int dv\, P_{det}(v) f\left(\frac{\delta}{\bar{N}\Omega'_2}\right) \frac{1}{2}\left(1-\cos 2\sqrt{\delta^2+\bar{N}^2\Omega'^2_2}.t_{int}\right) \quad (26)$$

Par ailleurs, l'efficacité de détection dépend de la vitesse : nous ionisons les atomes présents à l'intérieur du condenssateur de détection toutes les 140 $\mu s = t_{det}$ la longueur du condensateur valant l_{det} (= 1cm) on détecte seulement la proportion $l_{det}/(v.t_{det})$ des atomes ayant la vitesse v et traversant la zone de détection. La distribution de vitesses $P_{det}(v)$ à la détection vaut donc :

$$p_{det}(v) = cste.v.e^{-\frac{mv^2}{2KT}}.e^{-\frac{lmax}{v\tau}} \qquad (27)$$

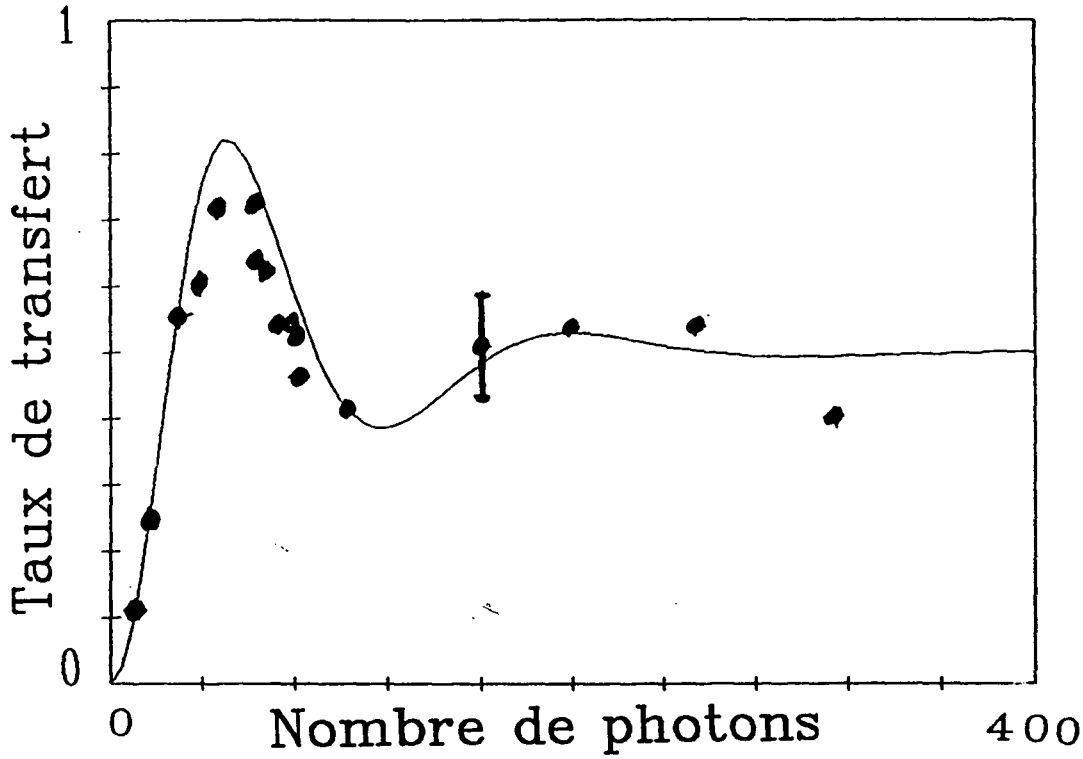
lmax = 4 cm est la distance séparant l'excitation de la détection.

La figure (II.8) montre qu'il y a un bon accord entre le résultat ce calcul et l'expérience où la transition à deux photons est induite par un champ injecté de puissance variable. Le seul paramètre ajustable dans ces mesures est la calibration absolue du nombre de photons injectés dans la cavité car ce n'est pas une grandeur facile à mesurer précisément. (La valeur de l'atténuation globale entre la source microonde extérieure produisant le champ et la cavité n'est connue qu'à un facteur 2 près). En revanche, les calibrations relatives de puissance sont parfaitement contrôlées. Le champ correspondant au maximum du taux de transfert dans une cavité accordée (Fig. II.8.a) est estimé à 35 photons alors que la valeur théorique est de 50. La raie à deux photons (Fig. II.8.b) est symétrique, sa largeur vaut 41 kHz lorsqu'elle est désaturée. Elle est donc un peu plus large que la courbe théorique (Δ_{th} = 31 KHz). Ceci est dû aux champs électriques parasites inhomogènes ($\sim$ 0,23 V/cm). Ils produisent un élargissement de la raie d'environ 10 KHz.

4) - <u>La transition à deux photons dans le maser</u>

Nous avons deux séries de courbes expérimentales à interpréter : la variation du taux de transfert en fonction du taux de pompage à accord de cavité constant, et la forme de raie du maser qui est la variation du taux de transfert lorsqu'on désaccorde la cavité à population atomique fixée.

Les calculs théoriques sont immédiats à partir de l'expression du gain $\bar{n}(\bar{N},\delta)$ (formule (22)) qui donne la valeur de $\bar{N}$ en régime d'oscillation stationnaire dès que l'on a choisi δ et


1
Taux de transfert
0
0
Nombre de photons
400

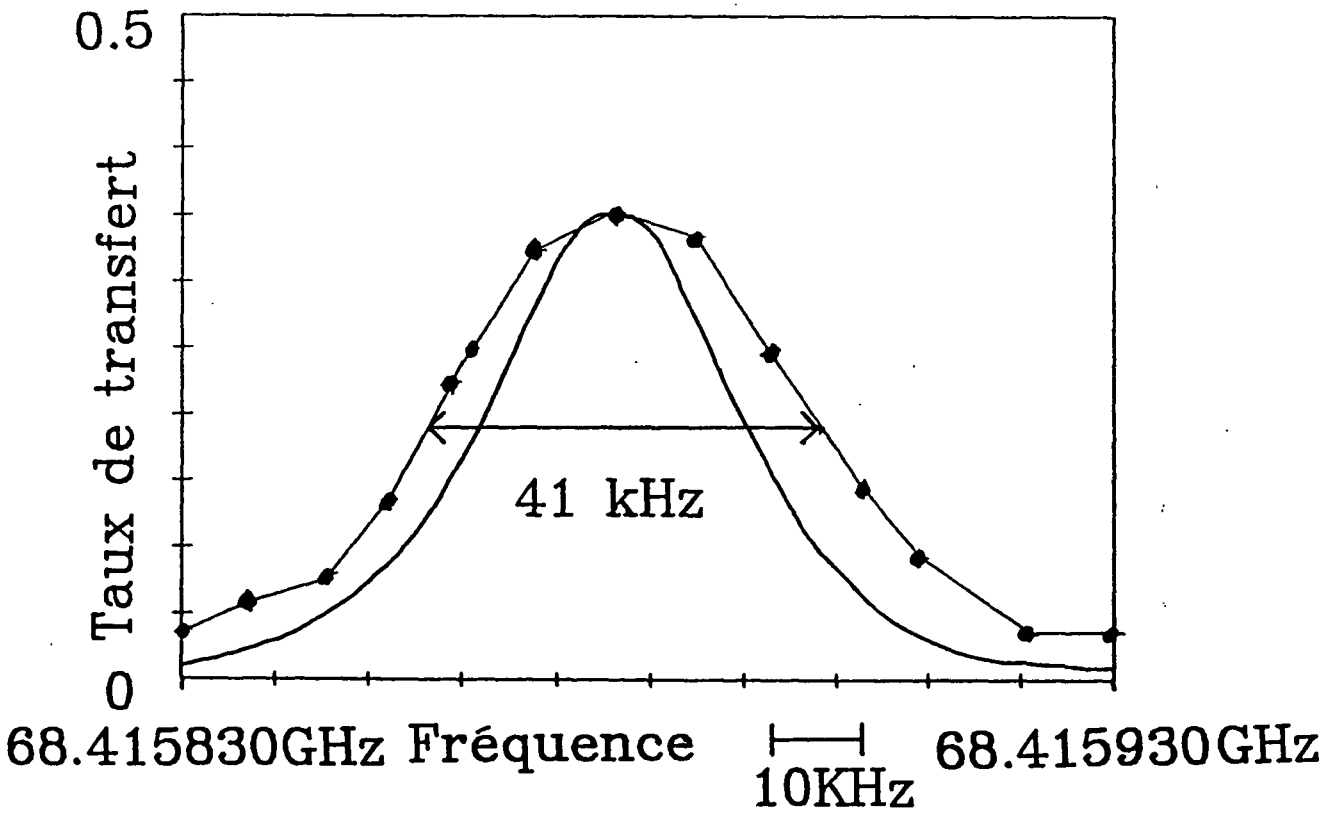

0.5
Taux de transfert
0
41 kHz
68.415830GHz Fréquence
10KHz
68.415930GHz

Figure II.8

$1/t_{at}$. Le signal atomique mesuré $P_{f\,det}(\bar{N},\delta)$ est alors directement donné par la formule (27).

Il faut cependant tenir compte ici des fluctuations du pompage et donc du nombre de photons $\bar{N}$ (de l'ordre de 20 % dans l'expérience). Elles sont prises en compte par un moyennage de $P_f det\ (\bar{N},\delta)$ par rapport à ces fluctuations de $\bar{N}$.

L'accord est encore satisfaisant (Fig. II.9). On observe que la raie maser au voisinage immédiat du seuil est plus étroite que la raie à deux photons puisqu'elle ne fait que 20 kHz de large. Ceci est une manifestation directe du fait que l'oscillation à deux photons est un effet à seuil.

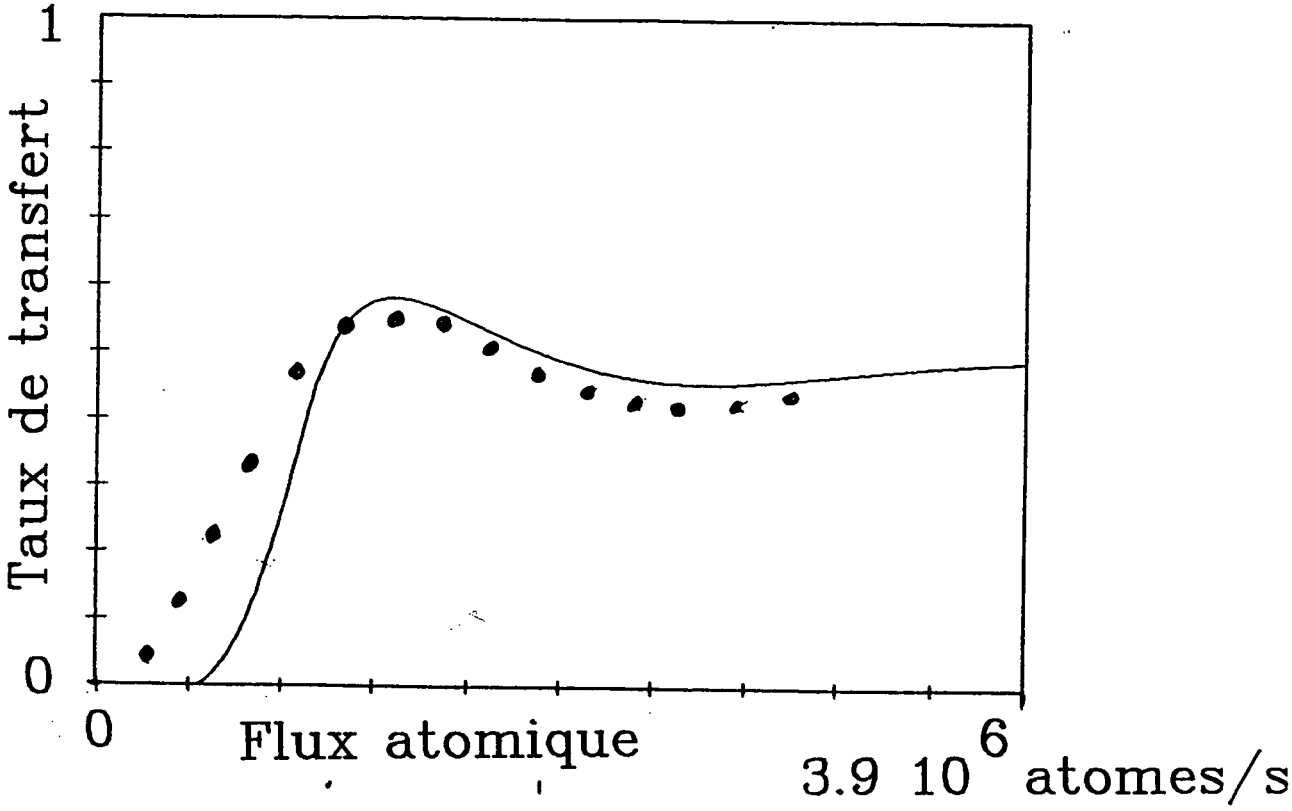
5) - Multistabilité et chaos dans un oscillateur à deux photons

Nous introduisons ici une théorie simplifiée du micromaser à deux photons dans laquelle on considère un jet monocinétique d'atomes ayant une durée de vie infinie. Le gain dans un tel système est directement donné par la formule (16) d'oscillation de Rabi, et dans ce cas l'équation d'évolution du nombre de photons pour un champ résonnant est (on suppose la cavité accordée, $\delta = 0$) :

$$\frac{d\bar{N}}{dt} = -\frac{\bar{N}}{t_{cav}} + \frac{2}{t_{at}}\left[\sin^2\left(\Omega_2\ t_{int}\ \bar{N}\right)\right] \qquad (28)$$

Le gain a maintenant une variation sinusoïdale (Fig. II.10). La recherche des solutions stationnaires stables se fait de façon exactement analogue au paragraphe 3. Celles-ci sont représentées par des ronds sur la Fig. (II.10). On constate que, lorsqu'on augmente le taux de pompage, de nouveaux points de fonctionnement stables apparaissent constamment. L'oscillateur est maintenant multistable.

a)



b)

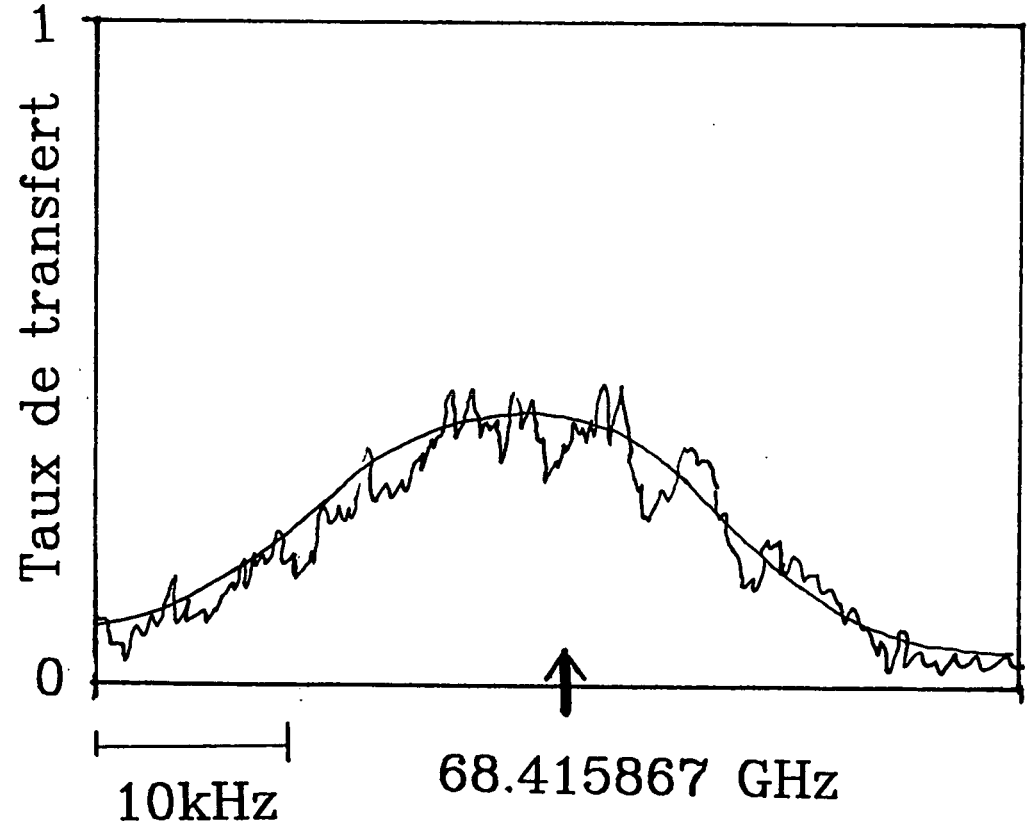


Figure II.9

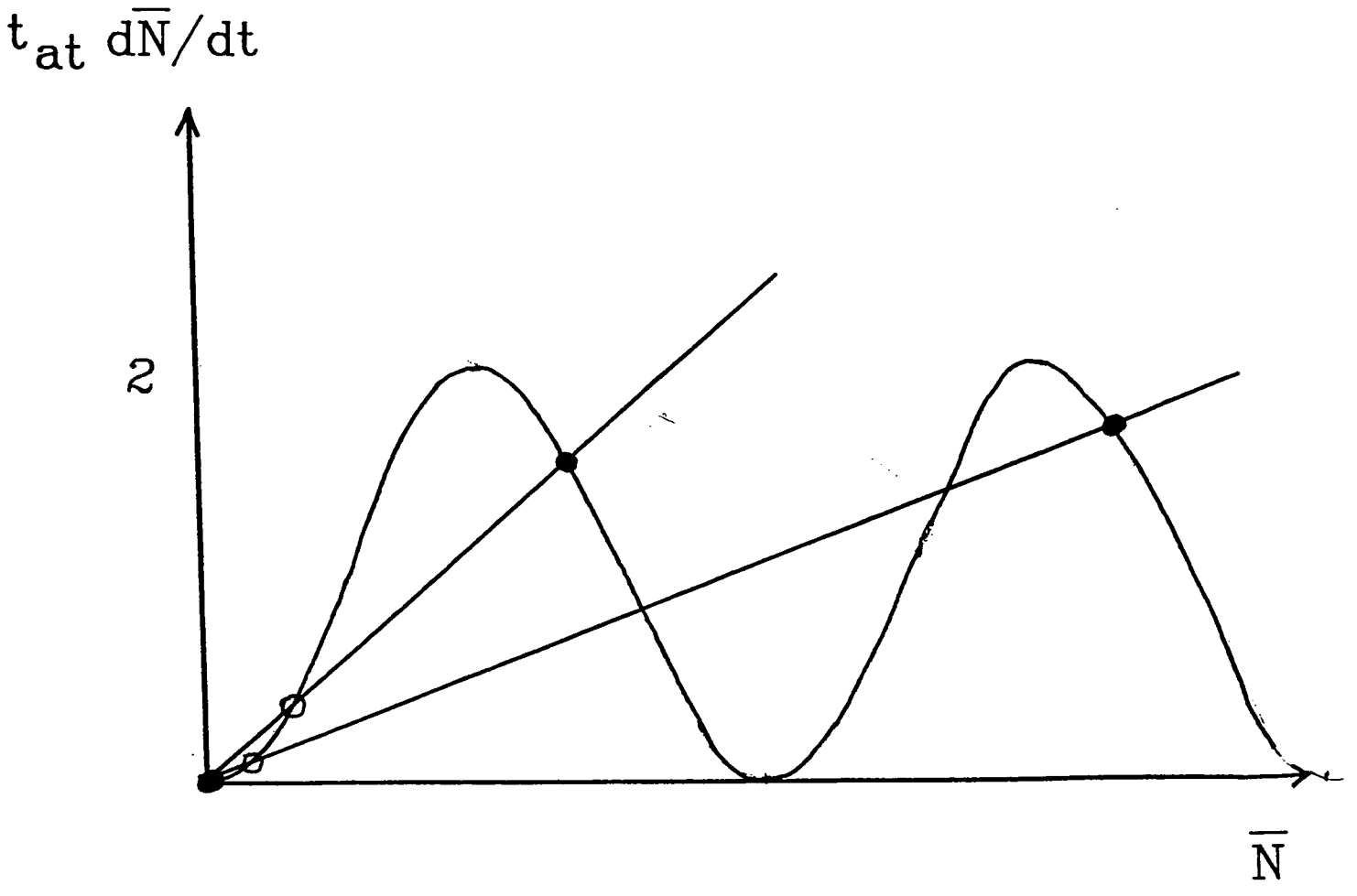


Figure II.10

La réalisation d'un oscillateur dont la méthode de préparation atomique serait capable de sélectionner une seule classe de vitesses permettrait de mettre expérimentalement en évidence cette multistabilité puisque le taux de transfert atomique dépend du point de fonctionnement considéré.

On peut présenter la recherche de ces solutions stationnaires d'une façon légèrement différente, et faire ainsi apparaître le chaos dans cet oscillateur : nous nous plaçons dans le régime de micromaser en supposant qu'un flux régulier d'atomes traverse la cavité (Fig. II.3). Plus précisément nous introduisons dans la cavité les atomes un à un à des intervalles de temps régulièrement espacés et égaux à t_{at}. Tous les atomes sont supposés avoir le même temps d'interaction t_{int} avec le champ. La condition $t_{at} > t_{int}$ assure qu'un atome au plus est présent à tout instant dans la cavité. Nous appellerons t_i l'instant où le $i^{ème}$ atome sort de la cavité, après avoir traversé le maser. Le nombre de photons à l'instant t_i en fonction de sa valeur à l'instant précédent t_{i-1} est alors donné par la transformation :

$$\bar{N}(t_i) = \bar{N}(t_{i-1}) + 2\sin^2(\Omega_2 t_{in} \bar{N}_{(t_{i-1})}) - \frac{t_{at}\bar{N}(t_i)}{t_{cav}} \qquad (29)$$

La signification physique de chacun des termes est évidente. L'établissement de cette équation l'est beaucoup moins : en particulier c'est $\bar{N}(t_i)$ et non $\bar{N}(t_{i-1})$ qui apparaît dans le terme de relaxation. La justification rigoureuse de cette expression est la formule (A.4) de l'annexe (C). Elle permet d'établir l'équation (29) comme limite semi-classique de l'équation d'évolution de la matrice densité du champ.

Les solutions stationnaires pour le nombre de photons dans le maser sont maintenant les points fixes de la transformation :

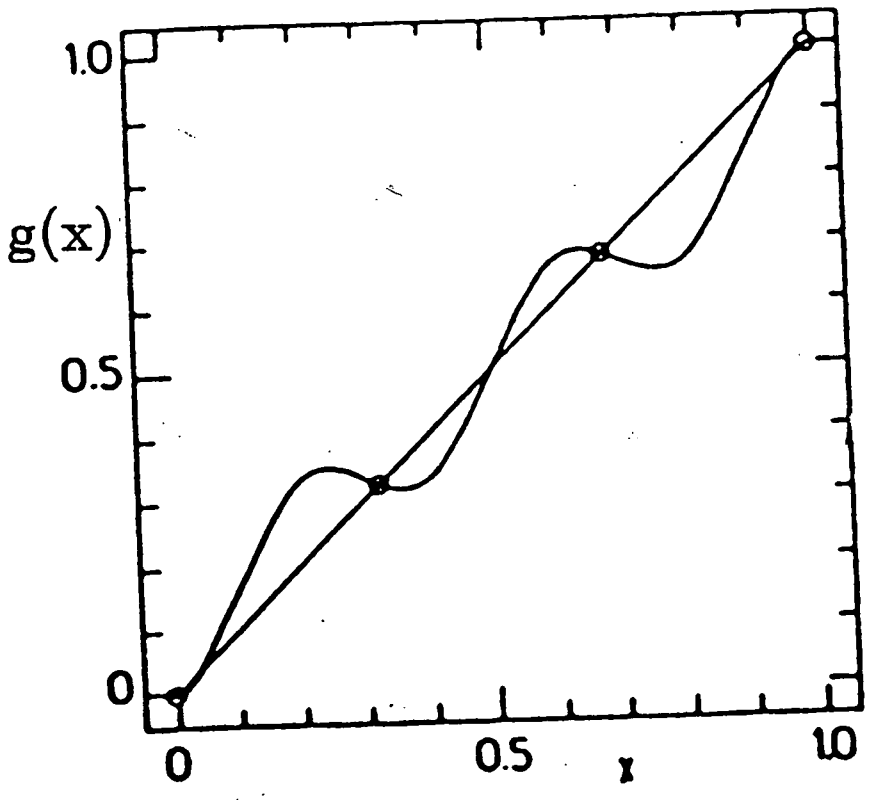


Figure II.11

$$g(x) = \frac{x}{1 + \frac{t_{at}}{t_{cav}}} + 2 \sin^2 (\Omega_2 \, t_{int} \, x) \qquad (30)$$

Ce sont les intersections entre la courbe représentative de g et la première bisectrice de la Fig. (II.11). Elles correspondent exactement aux solutions du modèle précédent. La condition de stabilité est cependant légèrement différente : il faut maintenant que $|g'(x)| < 1$ au point d'intersection x. Ainsi, les points $x_0 = 0$, x_1 et x_2 qui étaient toujours stables dans l'analyse précédente peuvent maintenant devenir instables.

Ceci apparaît clairement sur la Fig. (II.12) où on a représenté les valeurs prises par $\bar{N}$ dans le maser après un temps d'évolution suffisamment long pour différentes valeurs t_{at}/t_{cav} (les valeurs de N sont calculées par simple itération de (29)). Dans ce calcul nous avons choisi $\Omega_2 \, t_{int} = \pi$. Pour les valeurs de t_{at}/t_{cav} présentées ici il y a une seule solution stationnaire non nulle. Celle-ci est stable pour $t_{at}/t_{cav} > 2.65$ (Fig. II.12). Cette valeur correspond au point où $g'(x_1) = 1$. Il apparaît alors une série de bifurcations du nombre de photons dont le comportement devient finalement chaotique.

Le nombre de photons correspondant est cependant très faible ($x_1 \sim 0,25$) et on peut raisonnablement douter de la validité du modèle classique dans un tel régime. Il ne semble malheureusement pas possible de faire apparaître ces effets chaotiques dans une approche quantique.

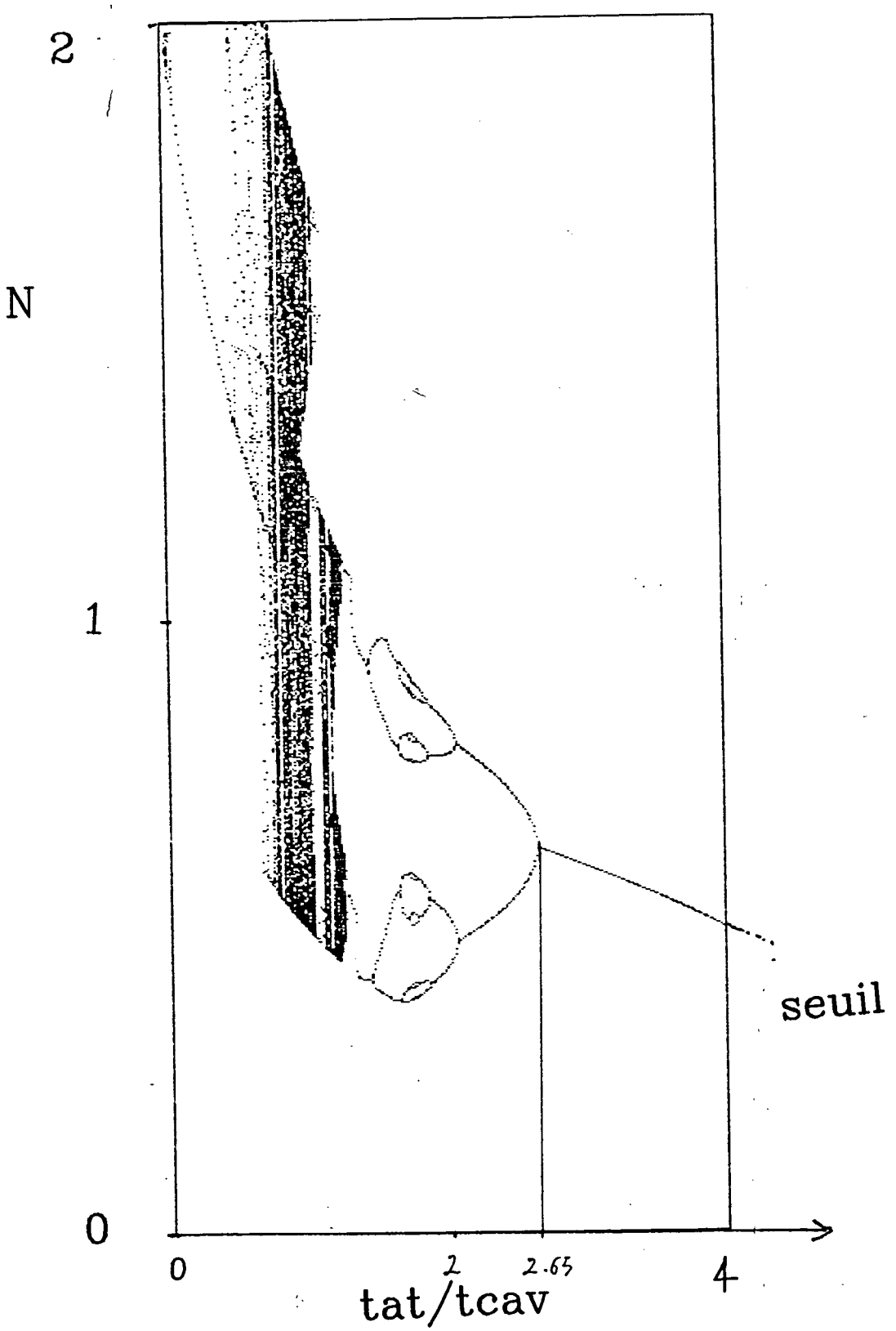


Figure II.12

CHAPITRE III

PRÉSENTATION DE LA THÉORIE QUANTIQUE

DU MICROMASER À DEUX PHOTONS

CHAPITRE III

PRESENTATION DE LA THEORIE QUANTIQUE DU MICROMASER A DEUX PHOTONS

Jusqu'à présent, nous avons décrit le maser à deux photons à partir d'un modèle semi-classique ignorant complètement la nature quantique du champ. Celui-ci était simplement décrit par un nombre moyen de photons. Ce modèle nous a permis de montrer qu'au voisinage du seuil d'oscillation, le système opère dans un régime de micromaser où un champ de 35 photons environ interagit avec 3,5 atomes en moyenne à chaque instant dans la cavité. Dans un tel régime, on peut douter de la validité d'une description classique du champ : pour des nombres de photons aussi petits, on ne peut ignorer ni le caractère fondamentalement discret de N ni les fluctuations quantiques du champ et, en particulier, leur manifestation essentielle : l'émission spontanée. D'autre part, les atomes eux-mêmes sont une importante source de fluctuations : le processus d'excitation atomique tout comme l'émission stimulée dans le maser sont des processus quantiques dont on ne sait prédire les résultats que de façon statistique, par des probabilités de transitions. Les fluctuations purement classiques de l'excitation atomique (fluctuations d'intensité du jet atomique et de la stabilisation des lasers) viennent s'ajouter à ces effets quantiques.

Dans un micromaser, situation où le flux atomique est très faible, on conçoit facilement que tous ces processus aléatoires introduisent des fluctuations particulièrement importantes. La théorie quantique du maser à deux photons que nous allons résumer ici s'efforce de prendre en compte tous ces effets.

Nous allons tout d'abord décrire le processus d'interaction à deux photons atome-champ en prenant en compte la

nature quantique du champ. Nous mettrons ensuite l'accent sur les effets de sa distribution statistique (§ 1). A partir de ce calcul, nous introduirons l'équation pilote du champ et présenterons les propriétés statistiques du champ qu'elle nous permettra de décrire (§ 2). Le paragraphe 3 sera consacré à la description du champ par une équation de type Fokker-Planck pour la fonction de distribution du nombre de photons dans le maser. L'introduction de ce formalisme bien adapté à la prise en compte de fluctuations, nous amènera à redéfinir les notions de seuil et de multistabilité pour le micromaser à deux photons. Il deviendra en particulier possible de comprendre le démarrage d'un oscillateur microscopique à deux photons (§ 3.a). Nous verrons enfin que l'introduction de ce formalisme ainsi que sa généralisation aux éléments non diagonaux de la matrice densité du champ permet une description détaillée des propriétés du champ dans le maser (§ 3.b).

Le détail des calculs sur lesquels repose ce chapitre est donné dans les appendices B et C. Nous nous contenterons ici d'introduire les éléments de ce nouveau modèle et d'en décrire les principales conséquences physiques, en particulier lorsque celles-ci sont susceptibles d'une vérification expérimentale. Nous mettrons l'accent sur les différences avec le modèle semi-classique et avec le cas d'une transition à un photon.

1) - Interaction d'un atome à deux niveaux et d'un champ quantique

Le calcul repose sur l'application du formalisme de l'atome habillé [C. Cohen-Tannoudji et al. 1977] à un système atomique à trois niveaux. L'espace des états dans lequel on se place maintenant contient les kets $|\alpha,N\rangle$ où α = e, i ou f décrit l'état atomique et N le nombre de photons du champ. Le hamiltonien du système couple alors ces états par groupes de trois pour chaque valeur de N : $|e,N\rangle$, $|i,N+1\rangle$ et $|f,N+2\rangle$. La diagonalisation exacte de ce hamiltonien à l'intérieur de chacun de ces sous-espaces fournit les états propres du système couplé atome-champ

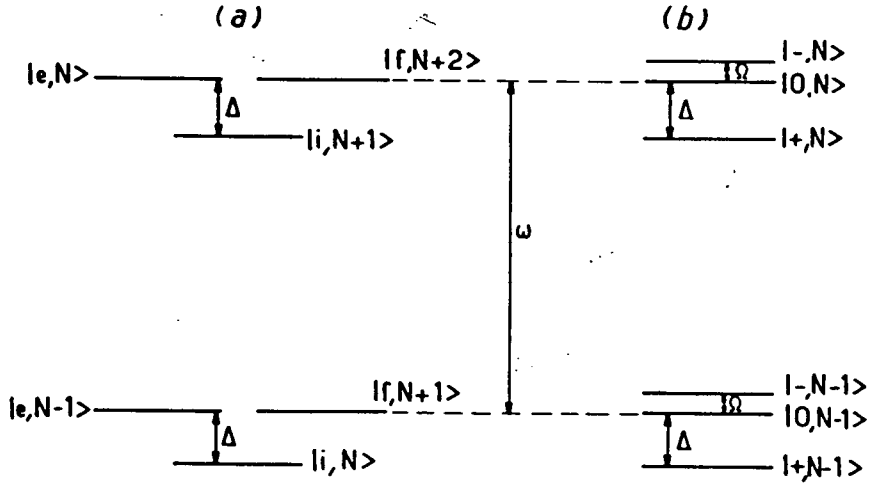


Figure III.1

(Fig. III.1). Ce sont les états atomiques habillés "à deux photons" [M. Brune et al. 1987]. La pulsation de Rabi à deux photons dans la multiplicité N considérée correspond à la plus petite des fréquences de Bohr associées à ces trois états habillés. Son expression est :

$$\Omega_{2\varphi}(N) = \frac{\Omega_{ei}^2 \ (N+1) + \Omega_{if}^2 \ (N+2)}{\Delta} = A + B\,N \qquad (1)$$

avec

$$A = \frac{\Omega_{ei}^2 + 2\,\Omega_{if}^2}{\Delta}$$

$$B = \frac{\Omega_{ei}^2 + \Omega_{if}^2}{\Delta} \qquad (1')$$

A est la fréquence d'oscillation de Rabi entre les niveaux |e> et |f> lorsqu'on introduit un atome dans l'état |e> dans la cavité vide de photons et accordée sur la résonance à deux photons. A décrit donc l'émission spontanée à deux photons dans la cavité. Ce terme était évidemment absent du calcul semi-classique. BN est la contribution des photons présents dans la cavité à la pulsation de Rabi. C'est donc le terme d'émission stimulée. $\Omega_{2\varphi}(N)$ est la fréquence de Rabi pour un atome préparé dans l'état |e> qui traverse une cavité contenant exactement N photons.

Dans la limite classique nous avons :

$$\Omega_{2\varphi}(N) \approx B.N = \frac{\Omega_{ei}^2 + \Omega_{if}^2}{\Delta} N \qquad (2)$$

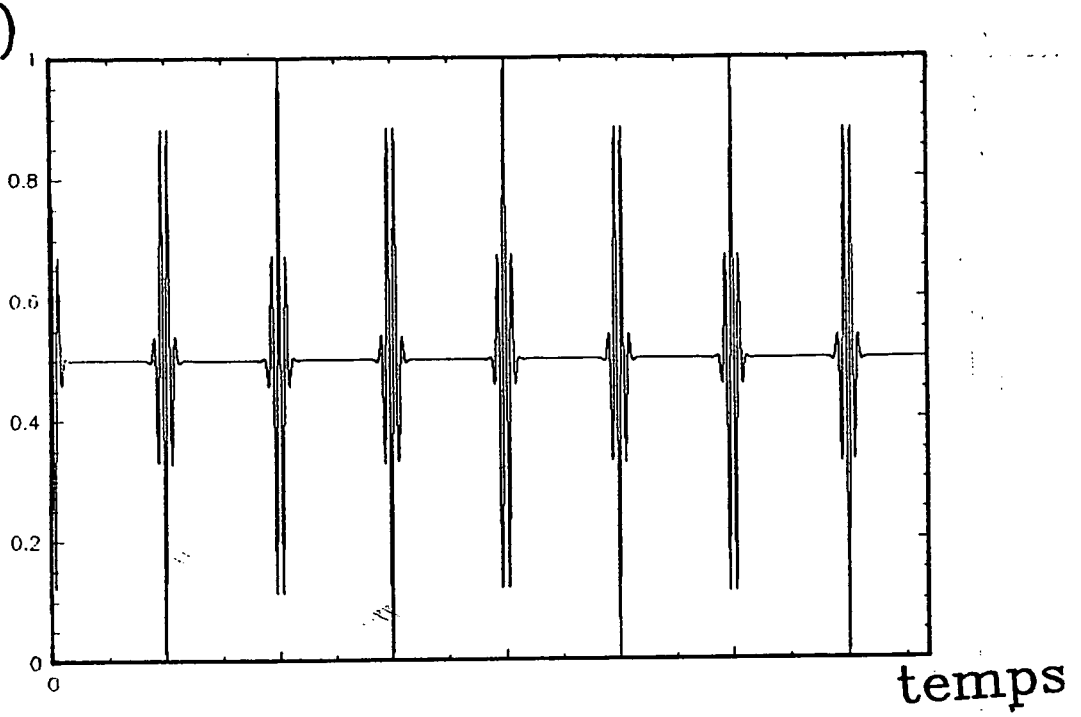
C'est bien l'expression que nous avions établie dans le modèle semi-classique (formule II.13') où nous nous étions limités au cas $\Omega_{ei} = \Omega_{if}$. En fait, les deux calculs coïncident parfaitement même sans cette hypothèse lorsqu'on prend correctement en compte les déplacements Stark dynamiques des niveaux |e> et |f> [M. Brune et al. 1987].

Le calcul quantique de l'interaction atome-champ permet en particulier d'établir l'expression des oscillations de Rabi à deux photons dans un champ dont le nombre de photons n'est pas parfaitement [H.I. Yoo et al. 1985] déterminé (par exemple un état cohérent [R.J. Glauber 1965] avec un petit nombre moyen de photons) : il apparaît un brouillage puis une réapparition quasi périodique des oscillations de Rabi en fonction du temps d'interaction. L'évolution d'un atome en interaction avec un champ pouvant contenir différents nombres de photons doit en effet faire intervenir autant de pulsations de Rabi différentes qu'il y a de nombres de photons à prendre en compte dans la statistique du champ. Le champ étant quantifié, les fréquences de Rabi qui interviennent forment un ensemble discret. Le résultat de l'évolution atomique sera alors une somme discrète (et en pratique finie) de termes oscillants à des fréquences de Rabi différentes. Le temps de brouillage des oscillations de Rabi est le temps qu'il faut pour que ces termes (tous en phase à t = 0) soient notablement déphasés entre eux. Le brouillage apparaîtra alors d'autant plus vite que les fréquences à considérer seront plus dispersées relativement à la fréquence de Rabi centrale. Cette dispersion est directement reliée à celle du nombre de photons dans le champ puisque les fréquences de Rabi dépendent de N (formule 1). Ainsi, pour des champs cohérents avec peu de photons, la dispersion relative du nombre de photons étant très grande, le brouillage apparaît très vite. Par contre, pour les champs cohérents à grands nombres de photons, le temps de brouillage devient infini et le champ peut être décrit simplement par une intensité moyenne : on est alors dans la limite classique. Le phénomène de réapparition des oscillations brouillées s'explique très facilement dans le cas d'une transition à deux photons : les pulsations de Rabi à considérer sont en effet (approximativement) proportionnelles au nombre de photon N (expression 2) :

$$\Omega_{2\varphi}(N) \approx B_2 . N$$

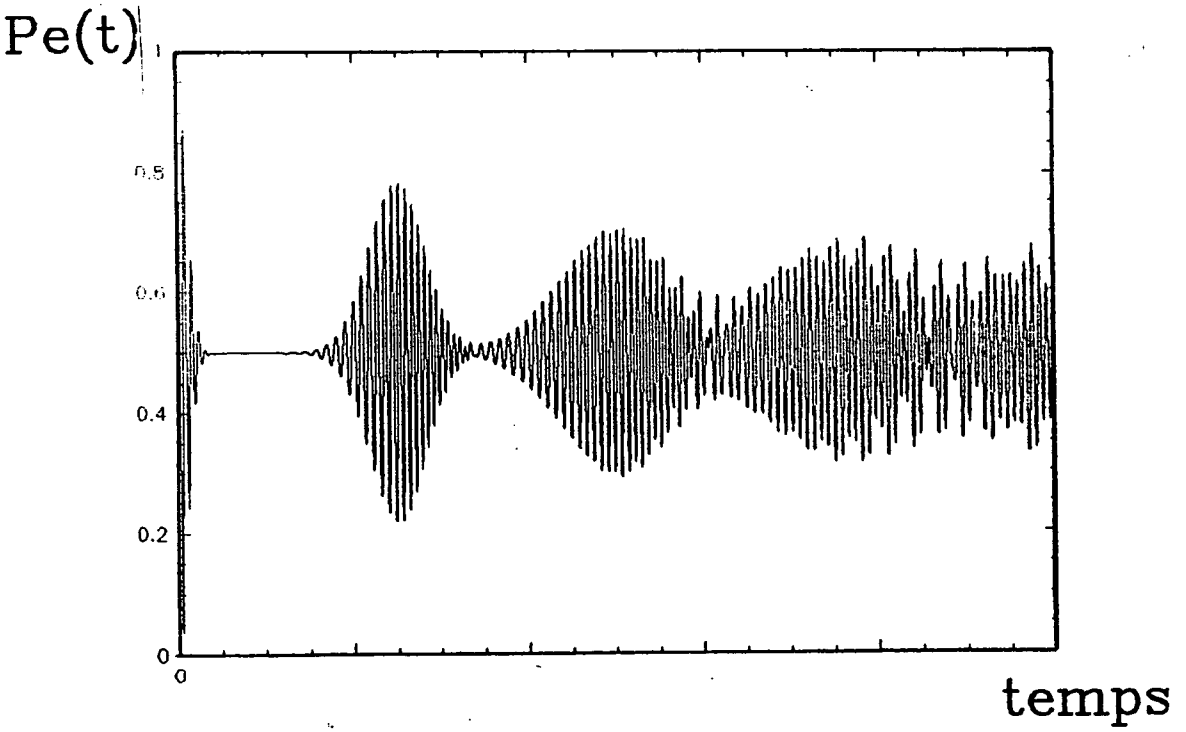
Elles sont donc toutes un multiple entier de Ω_2. Ainsi, pour tout temps $t = t_n$ tel que $B\, t_n = \pi n$ (n entier), tous les termes de

a)



2 photons

b)



1 photon

Figure III.2

l'évolution sont de nouveau en phase et les oscillations de Rabi réapparaissent périodiquement. Le cas à un photon est un peu plus complexe puisque :

$$\Omega_{1\varphi}(N) = 2\,\Omega_1\sqrt{N}$$

les fréquences n'ont pas entre elles de rapport fractionnaire simple. On observe tout de même une réapparition des oscillations de Rabi mais avec un contraste plus faible que celui des oscillations initiales [A. Faist et al. 1972, J.H. Eberly et al. 1980, P.L. Knight et al. 1982].

L'intérêt de ce phénomène est qu'il est une preuve directe de la quantification de l'énergie des photons dans le champ électromagnétique. L'utilisation d'une transition à deux photons pour l'étude de cet effet semble particulièrement bien adaptée puisque, du fait de leur quasi-périodicité, les signaux d'oscillation de Rabi attendus ont une forme particulièrement simple (par opposition au cas à un photon) (Fig. III.2).

Le calcul quantique du couplage atome-champ ainsi que celui des oscillations de Rabi à deux photons dans un champ cohérent est donné en appendice B.

2) - La description quantique du champ du maser. Généralités

a) - Equation pilote de la matrice densité du champ

Le champ est désormais représenté par sa matrice densité ρ dans la base des états à N photons. Une approche tout à fait équivalente à celle de Scully et Lamb [M. Sargent et al. 1974] dans le cas d'un laser à un photon, nous conduit alors à une équation pilote pour la matrice densité du champ du maser à deux photons :

$$\dot{\rho}_{NM} = -\frac{1}{t_{at}}\, a\,(N,M)\ \rho_{N,M} + \frac{1}{t_{at}}\, b\,(N,M)\ \rho_{N-2,M-2}$$
$$-\frac{1}{2t_{cav}}\,(N+M+2N_T\,(N+M+1))\ \rho_{N,M}$$
$$+\frac{1}{t_{cav}}\,(N_T+1)\,\sqrt{(N+1)(M+1)}\ \rho_{N+1,M+1} \qquad (3)$$
$$+\frac{1}{t_{cav}}\,N_T\,\sqrt{NM}\ \rho_{N-1,M-1}$$

Cette équation contient toute l'information à la fois sur l'évolution du champ dans la cavité et sur ses propriétés statistiques à un instant donné. Les deux premiers termes de l'équation (3) représentent l'effet de l'interaction atomique sur le champ. Dans l'équation d'évolution des éléments diagonaux ρ_{NN}, les coefficients a(N,N) et b(N,N) représentent respectivement les probabilités des deux processus où l'état à N photons est susceptible d'intervenir : l'émission de deux photons soit à partir de l'état N vers l'état N + 2, soit à partir de l'état N - 2 vers l'état N. L'expression des coefficients a et b se déduit immédiatement du calcul de l'évolution d'un atome préparé initialement dans l'état $|e\rangle$ sous l'effet d'un champ de N photons. Dans tous ce chapitre nous considérons toujours un champ à résonance avec la transition à deux photons $|e\rangle \longrightarrow |f\rangle$. Les trois derniers termes, où intervient le temps d'amortissement de la cavité, représentent la dissipation du champ. Ils modélisent le couplage à un réservoir thermique donnant à l'équilibre un champ thermique de N_T photons en moyenne.

Il est important de remarquer que tous les couplages qui apparaissent ici se font parallèlement à la première diagonale de ρ (Fig. III.3). Par la suite, nous allons donc regrouper les éléments de matrice parallèlement à cette diagonale et étudier l'évolution de chacun de ces sous-ensembles indépendamment des autres. C'est une simplification considérable pour la théorie présentée ici. Nous nous restreindrons en fait à la description de seulement trois

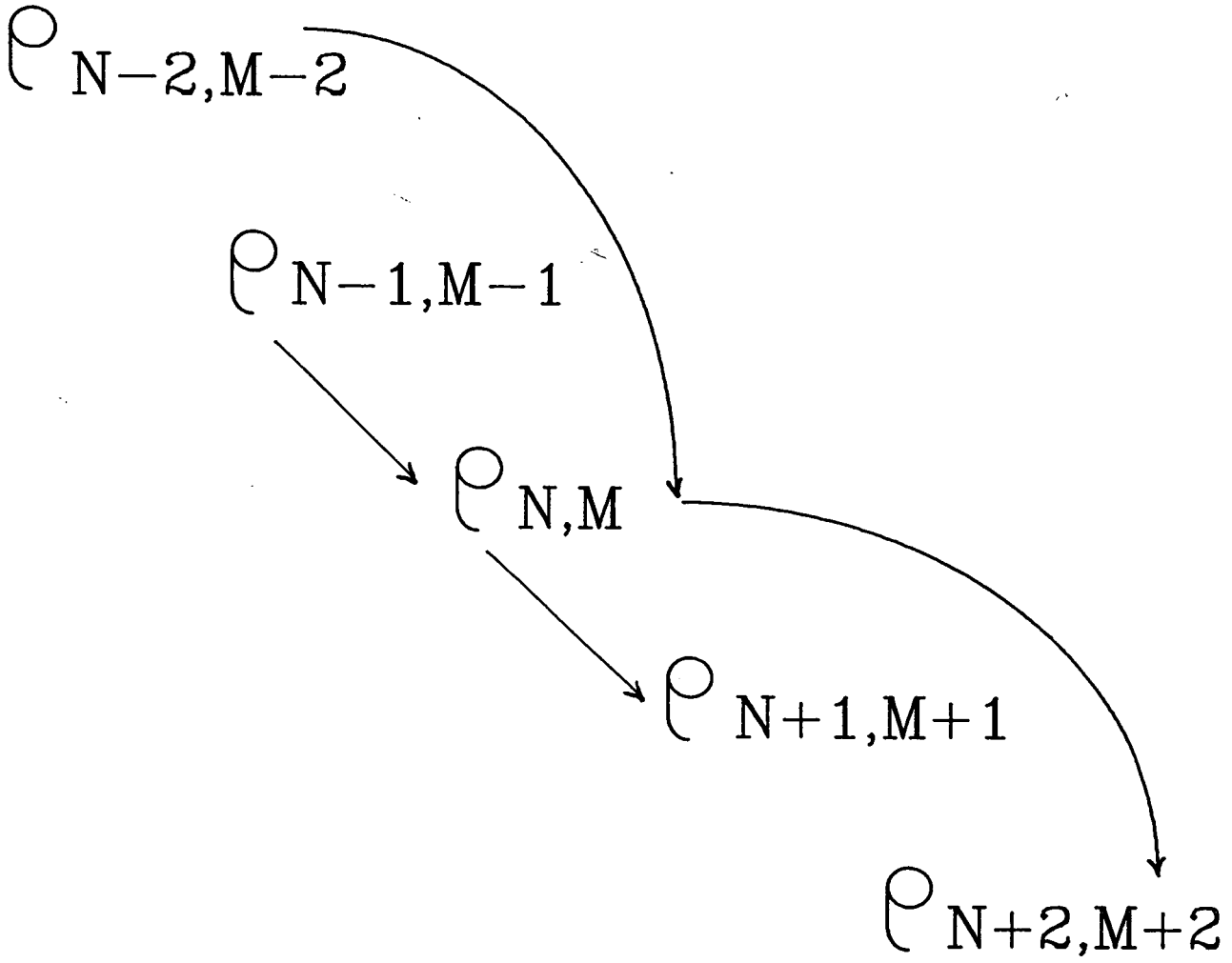


Figure III.3

"familles" d'éléments de matrice. Les éléments diagonaux ($\rho_{N,N}$) et leurs premiers et seconds plus proches voisins : ($\rho_{N,N+1}$) et ($\rho_{N,N+2}$). Ils contiennent en effet l'essentiel de l'information sur les propriétés statistiques du champ produit. Nous allons maintenent présenter une brève description de ces propriétés.

b) - Description du champ micro-onde dans le maser

La probabilité de trouver N photons dans le champ lors d'une mesure vaut $\rho_{N,N}$. Ces éléments de matrice représentent directement la distribution statistique du nombre de photons. L'expression du nombre moyen de photons :

$$\bar{N} = \sum_{N} N.\rho_{N,N} \qquad (4)$$

nous permettra de faire le lien entre cette distribution et la description semi-classique.

D'autre part, la variance du nombre de photons :

$$V = \frac{\sqrt{\overline{N^2} - (\bar{N})^2}}{\sqrt{\bar{N}}} \qquad (5)$$

ne dépend, elle aussi, que de $\rho_{N,N}$. Son calcul nous permettra de comparer l'amplitude des fluctuations du nombre de photons du champ du maser avec celle d'un champ classique, représenté par un état cohérent (statistique poissonnienne, V = 1) [R.J. Glauber 1965].

Le champ électrique est une grandeur physique dont notre modèle permet une étude très détaillée. Il est représenté quantiquement par l'opérateur :

$$\vec{\mathcal{E}} = \vec{\mathcal{E}}_0 \ (a\ e^{i\omega t} + a^+\ e^{-i\omega t}) \qquad (6)$$

où a et a^+ sont les opérateurs de création et d'annihilation de photons. Ils sont caractérisés par la relation de commutation

$$[a, a^+] = 1 \qquad (7)$$

La valeur moyenne du champ électrique dans un état ρ du champ est :

$$\langle \vec{\mathcal{E}}(t) \rangle = tr(\rho \vec{\mathcal{E}}) = \vec{\mathcal{E}}_0 \left[\sum_N \rho_{N,N+1}(t) \sqrt{N+1}\, e^{-i\omega t} + c.c. \right] \qquad (8)$$

Elle ne fait intervenir que les éléments de matrice $\rho_{N,N+1}$. Ceux-ci contiennent donc toute l'information sur l'amplitude et la phase moyenne du champ électrique à l'instant t. Ils nous permettront en particulier de calculer la constante de temps de diffusion de phase du champ dans notre système et de mettre en évidence un déplacement de la fréquence du champ dans la cavité par rapport à ω.

Un autre sujet très intéressant est l'étude des fluctuations du champ électrique micro-onde produit dans notre maser. Il est pour cela utile de décomposer ce champ en introduisant deux opérateurs A_1 et A_2 [D.F. Walls 1983, A. Heidmann et al. 1985 A et B]

$$A_1 = \frac{a + a^+}{\sqrt{2}}$$
$$A_2 = i \frac{a - a^+}{\sqrt{2}} \qquad (9)$$

La nouvelle expression du champ électrique est alors

$$\vec{\mathcal{E}} = \sqrt{2}\, \mathcal{E}_0 \, (A_1 \cos \omega t + A_2 \sin \omega t) \qquad (10)$$

L'intérêt de cette décomposition en deux quadratures déphasées de $\pi/2$ l'une par rapport à l'autre, est non seulement de faire apparaître les fluctuations quantiques de $\vec{\mathcal{E}}$ d'une façon particulièrement simple, mais aussi de décrire directement ces fluctuations dans toute expérience où on utilise une détection sensible à la phase du champ (par exemple, les expériences d'interférométrie).

D'après la relation de commutation entre a et a^+ (formule 7), le commutateur de A_1 et A_2 vaut :

$$[A_1 , A_2] = -i \qquad (11)$$

Une telle relation de commutation a pour conséquence immédiate la relation d'incertitude :

$$\Delta A_1 . \Delta A_2 \geqslant 1 \qquad (12)$$

ΔA_1 et ΔA_2 sont les écarts quadratiques moyens des résultats d'une mesure des observables A_1 et A_2. Ce sont ces grandeurs qui caractérisent la valeur des fluctuations quantiques lors d'une mesure de l'amplitude d'une des deux quadratures du champ. Elles font intervenir des termes quadratiques en a et a^+. Leur évaluation nécessite donc le calcul des éléments de matrice $\rho_{N , N+2}$. La relation d'incertitude (12) montre qu'il est impossible d'avoir un état quantique du champ pour lequel ces deux amplitudes soient parfaitement déterminées en même temps.

Par exemple on ne peut pas considérer l'état vide (0 photon) du champ comme un état où l'amplitude du champ électrique est strictement nulle : elle est nulle en moyenne, mais elle fluctue autour de 0. Ces fluctuations se manifestent entre autre dans le processus d'émission spontanée. Cet état du champ correspond en fait à $\Delta A_1 = \Delta A_2 = 1$. Dans un plan $(\langle A_1 \rangle, \langle A_2 \rangle)$ nous représenterons donc son champ électrique par un vecteur dont l'extrémité fluctue à l'intérieur d'un cercle centré sur l'origine et de diamètre unité (Fig. III.4.a).

Le cas d'un état cohérent du champ est aussi très intéressant à considérer, car il représente bien le champ rayonné par la plupart des lasers ordinaires. Les fluctuations quantiques associées à un tel état sont en fait les mêmes que celles du vide. On représentera donc aussi l'amplitude de son champ électrique dans le plan $(\langle A_1 \rangle \langle A_2 \rangle)$, par un segment dont l'extrémité fluctue à l'intérieur d'un cercle de diamètre unité (Fig. III.4.b). La longueur moyenne de ce segment correspond à l'amplitude moyenne de

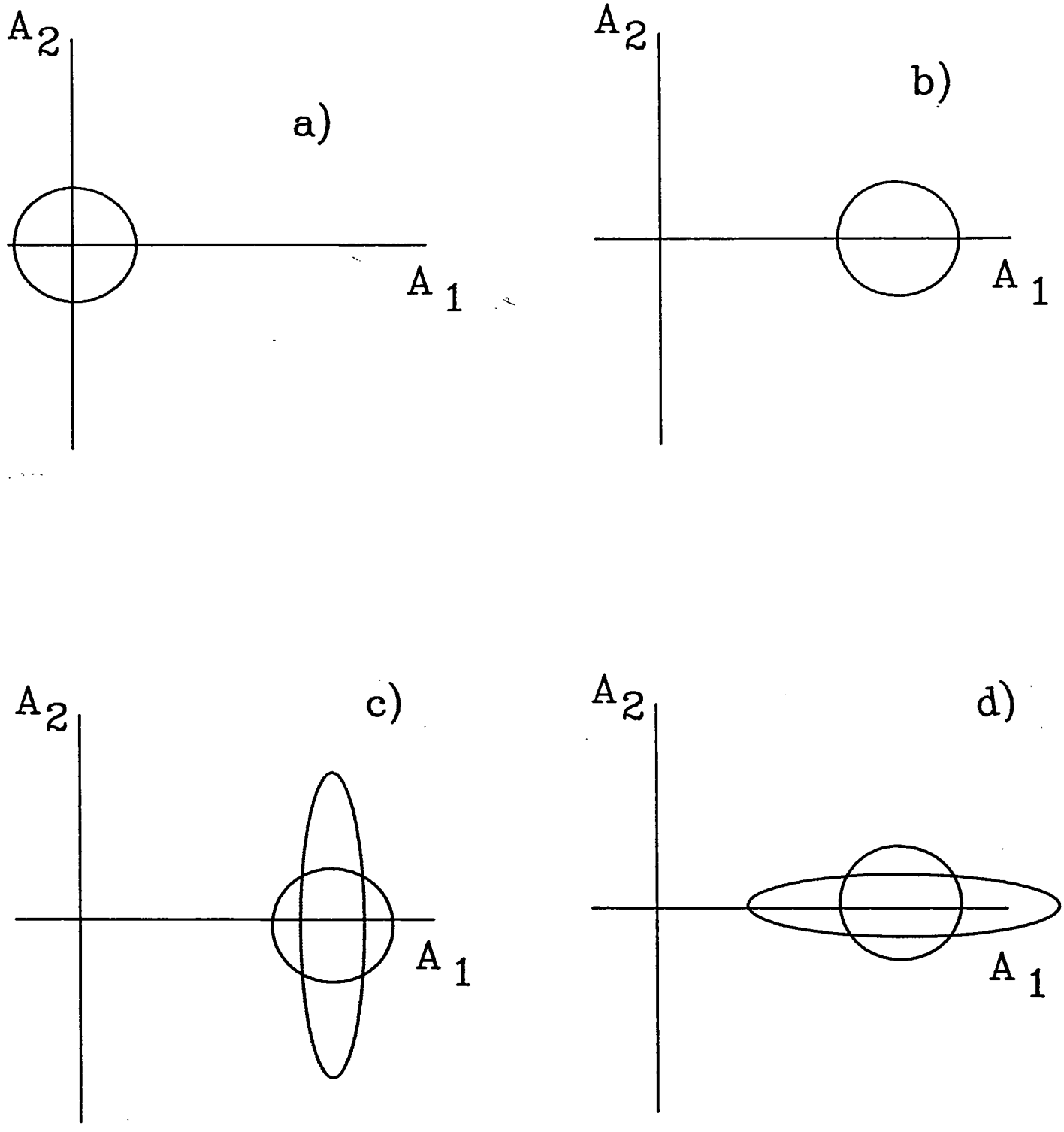


Figure III.4

ce champ. On a représenté un cas où $\langle A_2 \rangle = 0$. Dans ce cas et pour un état cohérent à grand nombre de photons, les fluctuations ΔA_1 représentent des fluctuations d'amplitude du champ tandis que ΔA_2 correspond à des fluctuations de phase. Lorsque le nombre de photons devient très grand, ces fluctuations gardent une amplitude constante. Elles deviennent donc négligeables en valeur relative et on retrouve la notion de champ classique dont la phase et l'amplitude sont bien définies. Dans toute expérience fondée sur la mesure d'un champ cohérent (par exemple en interférométrie), le rapport signal/bruit optimal autorisé par la mécanique quantique sera donc d'autant plus grand que l'on utilisera un champ plus intense. Il n'est cependant pas envisageable en pratique d'augmenter indéfiniment l'intensité des champs. Les fluctuations quantiques apparaissent donc comme une limitation fondamentale à la précision de toute mesure de ce type. Il existe d'ailleurs actuellement des méthodes de détections du champ assez peu bruyantes pour faire apparaître expérimentalement ce bruit quantique [L.A. Wu et al. 1986]. Il devient alors extrêmement tentant d'essayer de contourner cette limitation fondamentale en n'utilisant plus des états cohérents du champ mais des états appelés "états comprimés".

La relation d'incertitude (12) qui fixe la limite du bruit quantique concerne en effet seulement la valeur du produit $\Delta A_1 . \Delta A_2$. Il peut donc exister des états du champ où les fluctuations d'une des deux quadratures A_1 ou A_2 sont arbitrairement petites. C'est alors une augmentation des fluctuations de l'autre quadrature qui assure le respect de la relation d'incertitude. De tels états du champ sont présentés Fig. (III.4.c et d). Leurs fluctuations sont représentées, dans le plan $(\langle A_1 \rangle, \langle A_2 \rangle)$, par des ellipses dont le petit axe correspond à la quadrature comprimée du champ. La Fig. (III.4.c) correspond à un état dont les fluctuations d'amplitudes sont plus faibles que celles du vide, ce qui se "paie" par une plus grande indétermination de la phase par rapport à un état cohérent de même amplitude. Le cas symétrique (Fig. III.4.d) privilégie la définition de la phase aux dépens de celle de l'amplitude.

Notre système soulève un très grand intérêt dans ce

domaine car des travaux théoriques [H.P. Yuen 1975 et 1976] ont présenté les oscillateurs à deux photons comme des systèmes idéaux pour la génération d'états comprimés du champ. La nouvelle description du champ que nous allons maintenant introduire à partir de l'équation pilote (3) nous permettra de discuter quelques aspects de cette intéressante question.

3) - Principe de l'étude théorique. Résultats

L'équation pilote (3) décrit les trois familles d'éléments de matrice qui nous intéressent maintenant ($\rho_{N,N}$, $\rho_{N,N+1}$ et $\rho_{N,N+2}$) par trois équations différentielles indépendantes. A partir de chacune de ces équations, l'étude du champ du maser peut être menée soit par intégration numérique directe (ce qui est en pratique possible puisque nous considérons des champs de quelques dizaines de photons seulement) soit en introduisant des équations de type Fokker-Planck qui en sont dérivées [L. Davidovich et al 1987].

Nous résumons ici cette dérivation dans le cas des éléments diagonaux de la matrice densité $\rho_{N,N}$. Le principe de la méthode consiste à considérer maintenant le nombre de photons N comme une variable continue (que nous appellerons n pour éviter les confusions avec l'équation pilote). La distribution discrète $\rho_{N,N}(t)$ est alors remplacée par la fonction continue $\rho(n,t)$, dont l'équation d'évolution fait intervenir les valeurs de ρ en n n±1 et n-2. Pour des valeurs de n suffisamment grandes on peut remplacer toutes les expressions évaluées en n±1 et n-2 par un développement limité à l'ordre 2 autour de leur valeur en n. L'équation d'évolution de ρ ainsi transformée est alors de la forme :

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho(n,t) = \frac{\partial}{\partial n}[a_1(n),\rho(n,t)] + \frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial n^2}[a_2(n),\rho(n,t)] \qquad (13)$$

C'est une équation de type Fokker-Planck. Elle n'est en principe valable que pour les grandes valeurs de n. L'intégration numérique

directe de l'équation pilote montre que c'est en fait une excellente approximation dès que $n \geqslant 2$. Les coefficients a_1 et a_2 sont les termes de "dérive" et de "diffusion". Leur expression exacte est donnée en appendice. L'essentiel ici est qu'il est maintenant possible de construire à partir de a_1 et a_2 un "potentiel optique"

$$V(n) = - \int_0^n dn' \frac{a_1(n')}{a_2(n')} \qquad (14)$$

L'évolution de $\rho(n,t)$ peut alors être analysée en termes physique simples : il s'agit d'un phénomène de diffusion du nombre de photons n dans ce potentiel V(n). Nous allons maintenant présenter les résultats essentiels que l'introduction de ce nouveau formalisme nous a permis d'obtenir.

a) - Dynamique du micromaser à deux photons

Une forme typique du potentiel est représentée Fig. (III.5). Elle correspond à un maser dans des conditions telles qu'il y a deux solutions semi-classiques stables différentes de l'état "éteint" (Fig. II.9) (cas d'un jet monocinétique d'atomes). V(n) présente dans ce cas trois minima : l'un en $n = 0$ et deux autres, autour de n_1 et $n_2 \neq 0$ avec des "barrières optiques" entre ces minima. En toute rigueur, l'expression de V(n) donnée ici ne s'applique pas en $n = 0$. Il est cependant possible d'étendre la définition de V jusqu'à $n = 0$: l'équation pilote exacte permet de reconstruire le potentiel V à partir du calcul direct de la distribution du champ à l'équilibre. Ceci permet d'étendre notre analyse en terme de potentiel optique même dans le cas où celui-ci n'est pas calculable analytiquement.

La correspondance entre les solutions semi-classiques et le potentiel apparaît qualitativement Fig. (III.5) : ces solutions correspondent, avec une très bonne approximation, aux valeurs de n pour lesquelles le terme de "dérive" $a_1(n)$ de l'équation (x) s'annule. Elles sont reliées aux extrema de V, les solutions

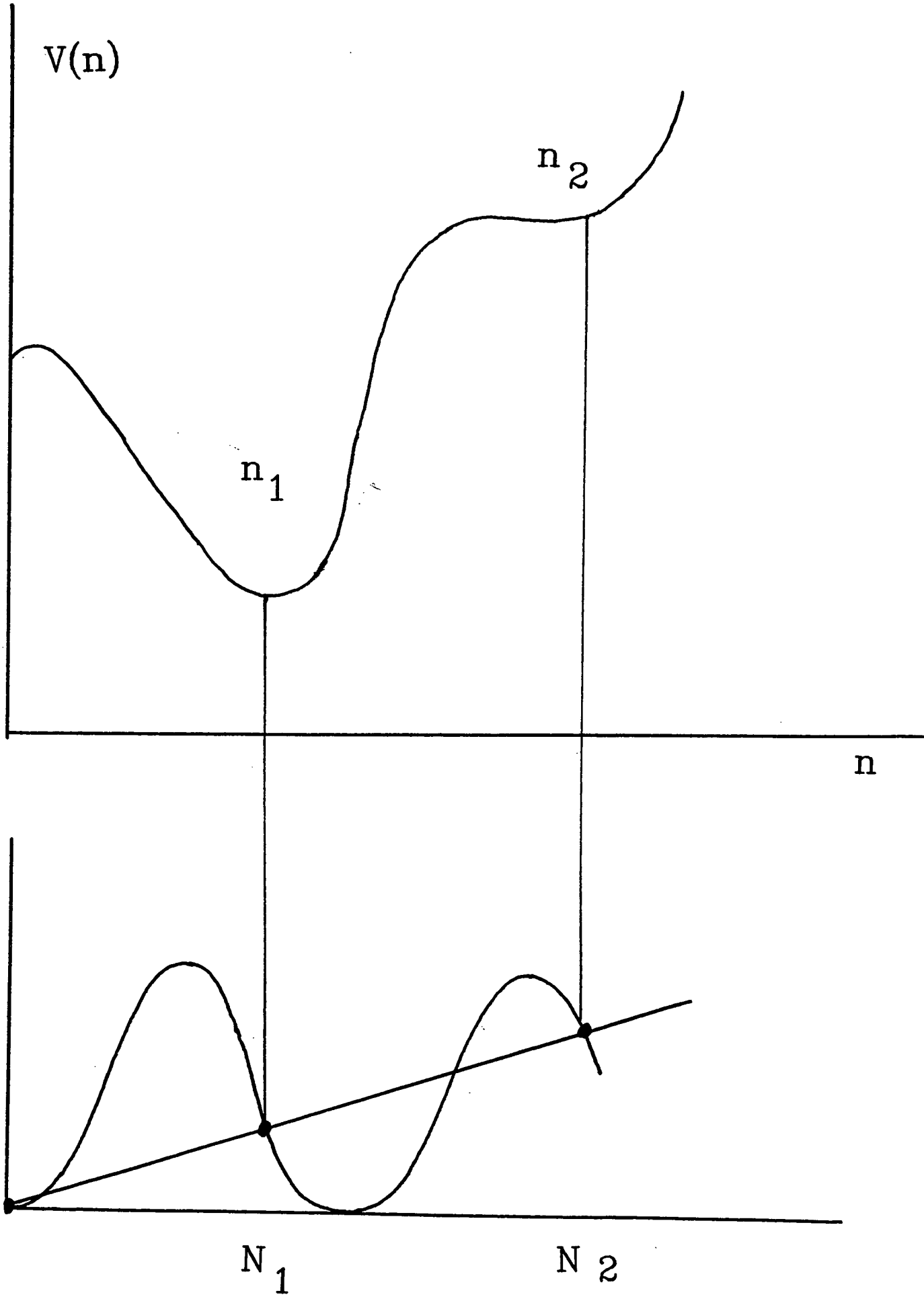


Figure III.5

stables correspondant aux minima.

La diffusion de $\rho(n,t)$ dans un potentiel présentant plusieurs puits comme celui de la Fig. (III.5) est un processus bien connu [M.G. Van Kampen 1981] qui a déjà été analysé en détail [P. Filipowicz et al. 1986]. Lorsqu'on part d'une distribution initiale $\rho(n,0)$ piquée autour d'un nombre de photons n_0, elle évolue avec une constante de temps "courte" (de l'ordre de t_{cav} dans notre cas) vers un quasi-équilibre, centré autour du minimum de V le plus proche de n_0. Ensuite, sur une échelle de temps plus longue (qui peut valoir de quelques t_{cav} à l'infini dans notre cas), $\rho(n,t)$ diffuse vers l'état l'équilibre global qui est centré autour du minimum absolu du potentiel. Cet état est décrit par une distribution du type Boltzman :

$$\rho_{équ}(n) = \frac{C}{a_2(n)} \exp(-2\,V(n)) \qquad (15)$$

C est une constante de normalisation.

Le processus de diffusion d'un équilibre local vers l'équilibre global, parfois assimilé à un effet tunnel à travers la barrière, est en fait un processus de diffusion induite au-dessus des maxima du potentiel optique, tout à fait similaire au mécanisme de Kramers introduit dans la théorie des réactions chimiques [N.G. Van Kampen 1981] : la "barrière" optique joue le rôle d'une énergie d'activation et les fluctuations (émission spontanée, fluctuations thermiques du champ et dispersion des temps d'arrivée des atomes) celui des fluctuations thermiques qui induisent le processus chimique. Le temps de passage de la barrière dépend à la fois de l'amplitude des fluctuations décrites par le terme de diffusion $a_2(n)$ de l'équation (13) et de la hauteur de la barrière. Ces deux paramètres dépendent du flux atomique. On montre en fait (formule de Kramer) que le temps de passage augmente exponentiellement avec la hauteur de la barrière ce qui permet de faire clairement le lien avec l'approche semi-classique : dans le cas d'un maser "macroscopique", avec un grand nombre d'atomes et de photons, le temps de passage ainsi calculé devient en pratique infini et le système reste trappé autour du minimum local au

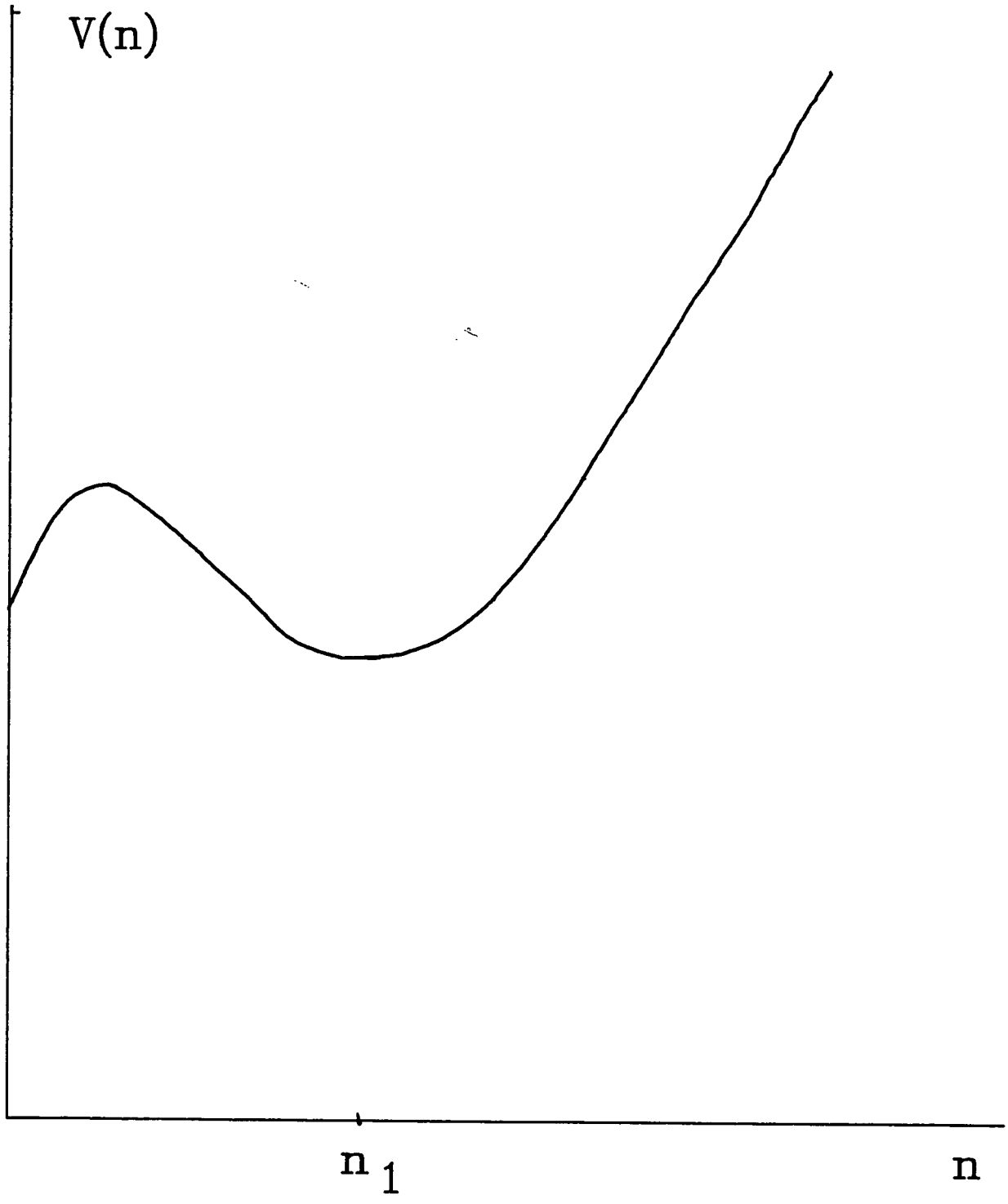


Figure III.6

voisinage duquel il a été initialement préparé. On retrouve les effets de multistabilité et la dépendance de l'état d'équilibre atteint vis-à-vis des conditions initiales.

Par contre, pour un maser microscopique, les temps de passage sont finis et font apparaître des effets dynamiques différents. Supposons, par exemple, qu'au temps t = 0 un maser correspondant au potentiel de la figure (III.5) soit dans l'état éteint (n = 0). Pendant un certain temps, le champ reste autour de n = 0. Ensuite, après un temps de passage long par rapport à t_{cav} (qui peut valoir plusieurs milliers de t_{cav}) le nombre moyen de photons du champ sera voisin de n_1. L'état maser éteint est par conséquent seulement métastable. De même, si la distribution du champ est initialement préparée autour de n_2 elle va d'abord évoluer rapidement vers une distribution centrée sur n_2, puis, après un temps de passage long, elle se trouvera piégée dans le minimum le plus bas : n_1. Par conséquent, un seul état du champ est en général stable dans le cas d'un micromaser.

L'intérêt nouveau du micromaser à deux photons par rapport à son équivalent à un photon est que n = 0 est un état métastable possible, même lorsqu'on considère un maser sans sélection des vitesses atomiques. Le potentiel V(n) calculé en prenant en compte une dispersion maxwellienne des vitesses atomiques présente en effet, au voisinage du seuil du maser, deux minima : l'un en 0, l'autre en $n_1 \neq 0$ (Fig. III.6). L'étude du démarrage de notre système permet donc directement de faire apparaître expérimentalement les effets dynamiques que nous venons d'introduire. Une analyse qualitative du comportement de démarrage du micromaser à deux photons en fonction du rapport t_{cav}/t_{at}, entre les constantes de temps du taux de pompage et de la cavité, va nous permettre de mettre en évidence la variété des effets auxquels on peut s'attendre.

Partons d'un maser fonctionnant dans les conditions correspondant au potentiel optique de la figure (III.7.a). Supposons que nous modifiions continuement t_{cav}/t_{at} (par exemple en changeant le facteur de qualité de la cavité) tout en maintenant

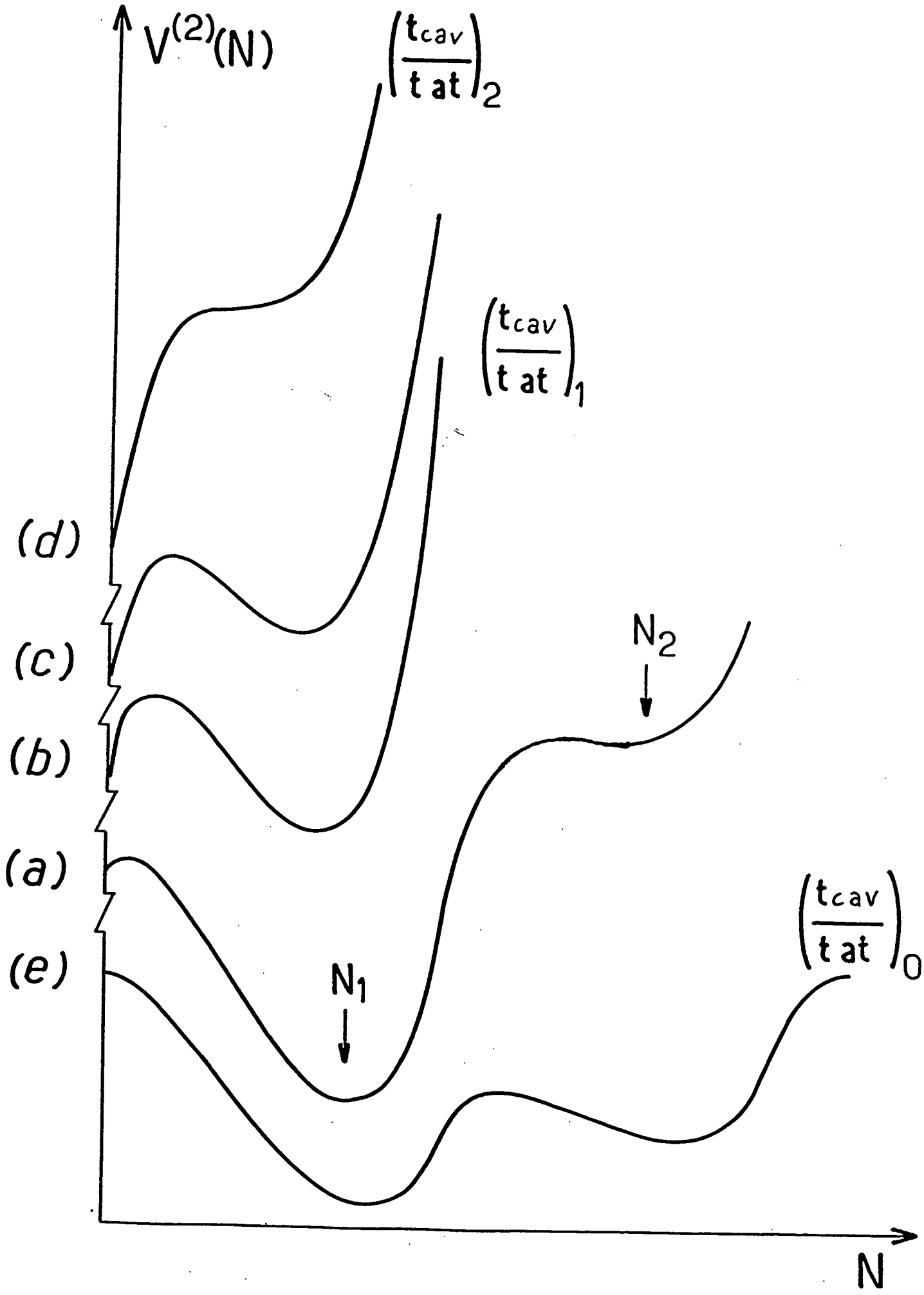


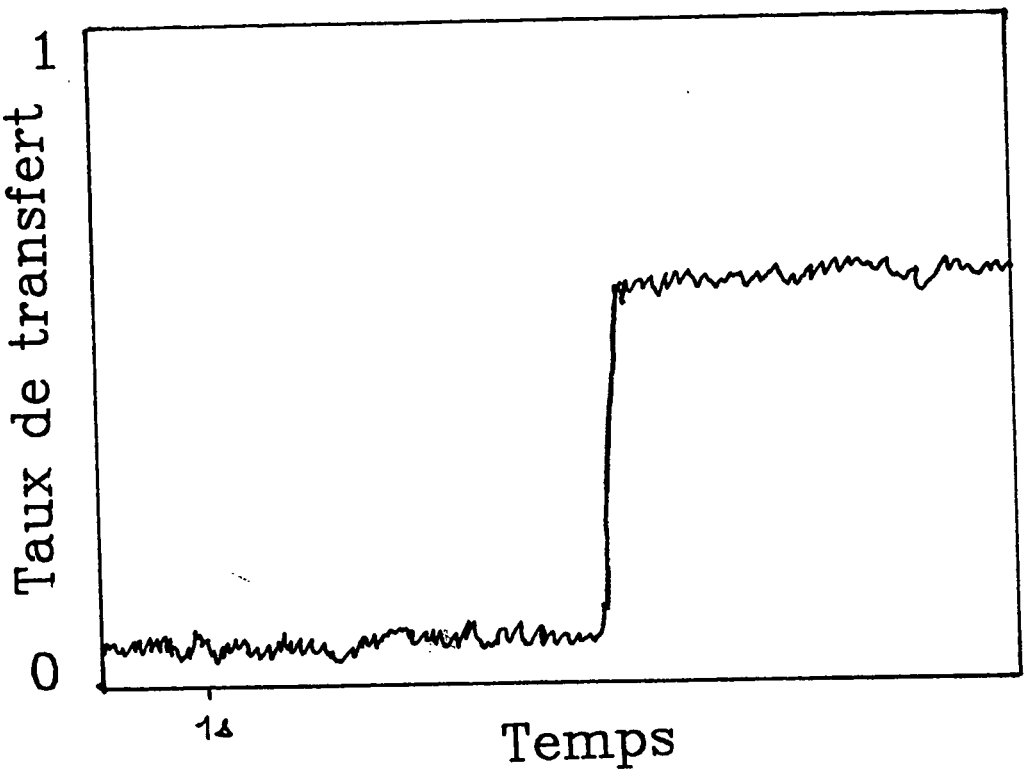
Figure III.7

tous les autres paramètres du maser [A,B,t_{int}] constants. La façon dont le potentiel optique évolue alors est représentée Fig. (III.7.a,b,c,d,e). Si t_{cav}/t_{at} diminue à partir du cas a, le minimum le plus bas de V(n) s'élève jusqu'à la hauteur du minimum en n = 0 pour une valeur critique $(t_{cav}/t_{at})_1$ (l'autre minimum n_2 a disparu bien avant cette valeur de (t_{cav}/t_{at}). Dans cette situation (Fig. 7.b) la distribution d'équilibre $\rho(n,t)$ donnée par l'équation (7) est une fonction doublement piquée autour de n = 0 et n = n_1. On s'attend à ce que le champ saute de l'une à l'autre de ces deux valeurs au gré des fluctuations. Le maser "clignote" aléatoirement. Ceci est le seuil du système dans le modèle quantique. Lorsqu'on diminue t_{cav}/t_{at} un peu plus (Fig. 7.c) le minimum absolu de V est maintenant n = 0 : bien que V ait encore deux minima, un micromaser opérant dans de telles conditions s'étendra toujours au bout d'un temps fini, qui peut cependant être long devant t_{cav}. Enfin lorsque le seuil classique $(t_{cav}/t_{at})_2$ est atteint Fig. (III.7.c), le potentiel n'a plus qu'un seul minimum : n = 0. A ce niveau de pompage tout champ présent dans la cavité s'amortira en un temps de l'ordre de t_{cav}.

Supposons maintenant que nous repartions de la situation représentée Fig. (III.7.a) et que nous augmentions t_{cav}/t_{at}. Le puits de potentiel en $n \neq 0$ se rapproche de plus en plus de 0, et la barrière entre ce point et n = 0 disparaît même pour une valeur critique de $t_{cav}/t_{at} = (t_{cav}/t_{at})_0$ (Fig. III.7.d). Classiquement ce seuil correspond au cas limite où la pente de la courbe de pertes devient si faible que le point de fonctionnement instable n'_1 (Fig. III.5) correspond à moins d'un seul photon. Lorsqu'un tel taux de pompage est atteint, l'état maser éteint n'est même plus métastable. L'allumage du maser se produit alors en un temps très court, de l'ordre de t_{cav} comme dans le cas d'un système à un photon. Dans les deux systèmes, la transition de phase correspondante est alors du second ordre. Le micromaser à deux photons à atomes de Rydberg peut donc présenter des comportements dynamiques très variés : l'état maser éteint peut être métastable ou instable selon le rapport du taux de pompage au temps d'amortissement de la cavité.

Le modèle présenté ici s'applique à la description

a)



b)

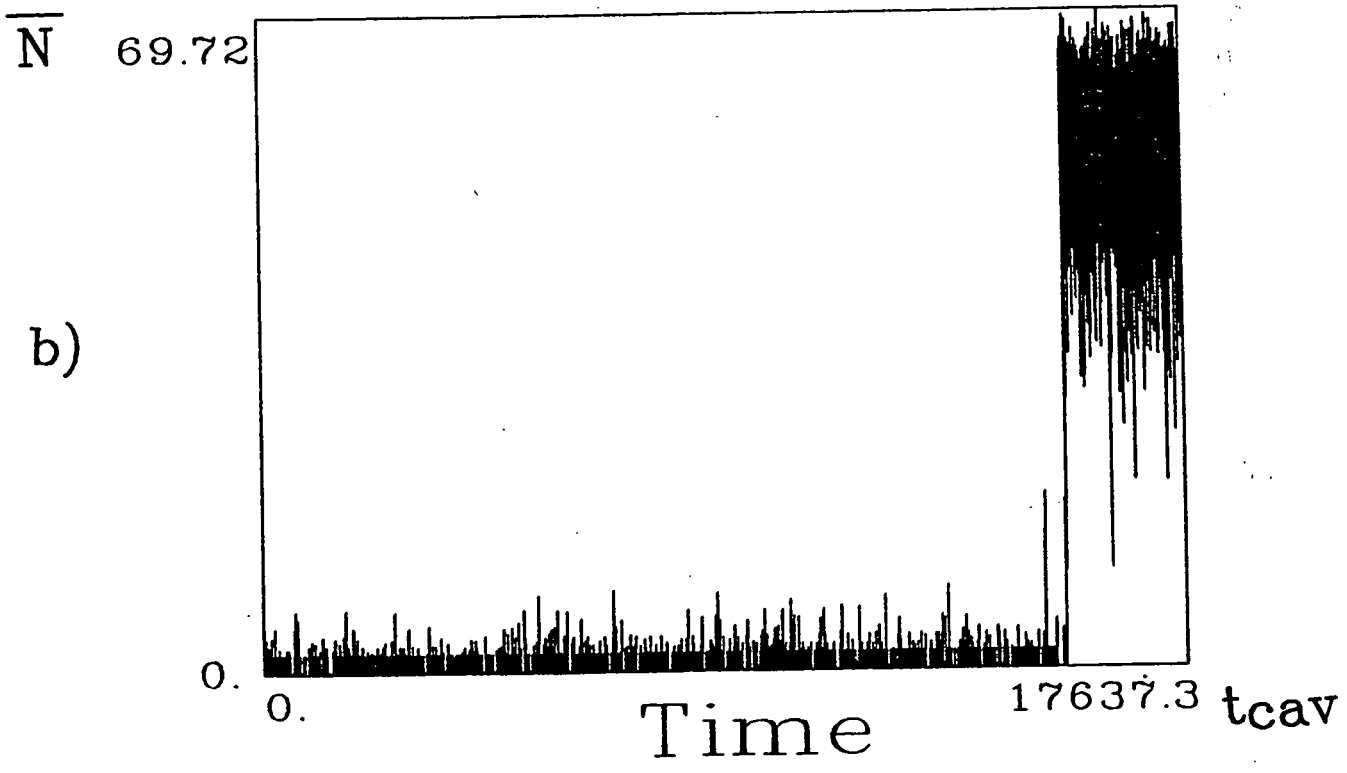


Figure III.8

statistique de mesures indépendantes sur un grand nombre de masers identiques. L'évolution réelle du champ dans une réalisation particulière du maser est notablement différente. En particulier, le passage de l'équilibre local à l'équilibre global dans une expérience est un effet très rapide (de l'ordre de t_{cav}) qui s'apparente plus à un saut d'un puits vers l'autre qu'à une évolution lente (Fig. III.8.a). La constante de temps de passage ne correspond pas à ce temps court mais au temps moyen que l'on doit attendre pour observer ce "saut".

La description correcte de cet effet doit prendre en compte un aspect très intéressant des expériences de micromaser à atomes de Rydberg et que nous avons négligé jusqu'ici : nous pratiquons à chaque instant une mesure de l'état quantique des atomes à la sortie de la cavité. C'est en fait une mesure indirecte du champ. La théorie quantique de la mesure prévoit alors que l'état du champ a un instant donné est affecté par chacune des mesures atomiques effectuées aux instants antérieurs : à chaque mesure atomique, la fonction d'onde du système atome + champ se trouve projetée sur un état qui dépend du résultat de la mesure. Par cet aspect, le phénomène de "saut quantique" [R.J. Cook et al. 1985, J. Javanainen 1986, C. Cohen-Tannoudji et al. 1986] doit être pris en compte pour la description de notre expérience.

La prise en compte de l'effet perturbateur de la mesure est facile ici car notre dispositif de mesure est un atome à deux niveaux : la détection d'un atome dans l'état $|f\rangle$ correspond à un gain de deux photons exactement pour le champ. Dans le cas idéal où tous les atomes sont détectés et où la cavité n'a pas de perte, on obtient ainsi un état de Fock du champ, et il suffit de compter les atomes dans l'état $|f\rangle$ pour connaître son nombre de photons. Pour un micromaser où les atomes traversent la cavité un à un et sont tous détectés, il est facile de simuler numériquement l'effet de ce processus aléatoire répété de réduction de l'état atome + champ. L'évolution temporelle du nombre de photons lorsqu'on part d'un maser éteint au-dessus du seuil (Fig. III.8.b) présente alors une longue période de latence suivie, au bout d'un temps aléatoire, d'un "saut" vers l'état allumé qui se produit en un temps de

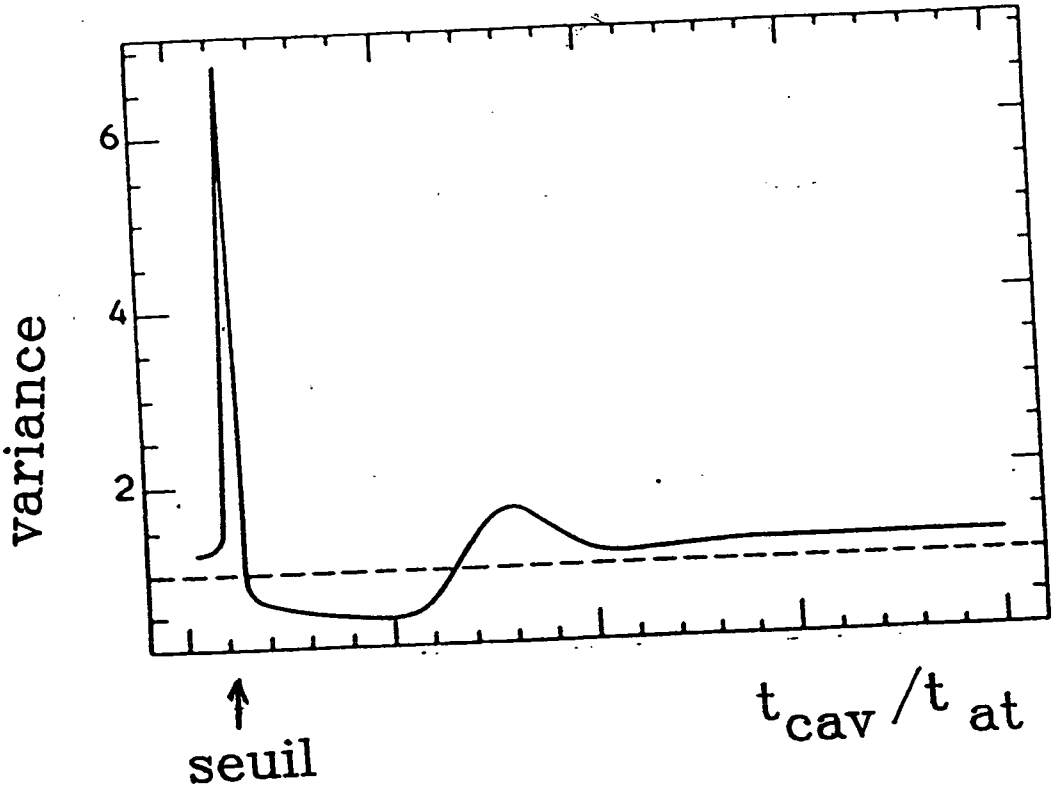


Figure III.9

l'ordre de t_{cav}.

Dans les conditions expérimentales, nous ne détectons qu'une petite fraction des atomes et nous avons plusieurs atomes à la fois dans la cavité. Notre mesure du taux de transfert moyen vers l'état $|f\rangle$ reste cependant une mesure de l'intensité moyenne du champ. Sa simulation ferait apparaître le même effet de saut lorsque la constante de temps de démarrage est longue devant la constante de temps de notre détection (temps de moyennage du signal atomique pour l'obtention d'un taux de transfert).

Tous ces effets dynamiques font actuellement l'objet d'une étude expérimentale.

b) - Propriétés statistiques du champ dans le maser

Nous avons vu que l'essentiel de ces propriétés étaient contenues dans les éléments de matrice $(\rho_{N,N})$ (fluctuations de l'intensité du champ) ; $(\rho_{N,N+1})$ (évolution du champ électrique moyen) et $(\rho_{N,N+2})$ (fluctuations de ce champ électrique).

L'expression (15) de la distribution $\rho(n)$ à l'équilibre permet immédiatement le calcul de la variance (formule (6)) du nombre de photons pour un maser en régime stationnaire d'oscillation. Tout comme dans le cas d'un micromaser à un photon [P. Filipowicz et al. 1986], on constate sur la figure (III.9) que, selon la valeur des paramètres t_{at}, t_{cav} et t_{int}, la statistique du nombre de photons peut être notablement différente de celle d'un état cohérent. Par exemple, au seuil semi-classique du maser, où le potentiel V(n) présente deux puits d'égales profondeurs, la distribution $\rho_{équ}$ est doublement piquée. La variance est alors très grande et la statistique du champ est largement sur-poissonnienne ($V > 1$). Par contre, lorsqu'on augmente le taux de pompage jusqu'au seuil quantique, V(n) n'a plus qu'un seul minimum et le puits correspondant est suffisamment étroit pour que la distribution d'équilibre du champ soit sub-poissonnienne ($V < 1$) : les fluctuations d'intensité sont plus faibles que celles d'un état cohérent qui contiendrait le même nombre de photons.

Le formalisme que nous venons de développer pour la description de $\rho_{N,N}$ s'applique de façon tout à fait similaire à $\rho_{N,N+1}$ et $\rho_{N,N+2}$. Les équations de Fokker-Planck dérivées dans ces deux cas ont cependant une forme légèrement différente. Si g(n,t) est la distribution continue qui représente l'une de ces deux classes d'éléments de matrice, son équation d'évolution est de la forme :

$$\frac{\partial}{\partial t} g(n,t) = - \mu(n)\, g(n,t) + \frac{\partial}{\partial n} [b_1(n).g(n,t)] + \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial n^2} [b_2(n).g(n,t)] \qquad (16)$$

Le premier terme du membre de droite, proportionnel à g était absent de l'équation (13) vérifiée par $\rho(n,t)$.

Considérons maintenant la distribution $\bar{g}(n,t)$ solution de l'équation :

$$\frac{\partial}{\partial t} \bar{g}(n,t) = \frac{\partial}{\partial n} [b_1(n).\bar{g}(n,t)] + \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial n^2} [b_2(n).\bar{g}(n,t)] \qquad (17)$$

A cette équation correspond un potentiel optique très voisin de V(n). L'évolution de $\bar{g}$ est donc tout à fait similaire à celle de ρ. Soit maintenant $\bar{g}_s(n)$ la solution stationnaire de cette équation dans le cas où on est au-delà du seuil quantique d'oscillation. Si cette solution est suffisamment piquée autour d'un nombre de photons $n_1 \neq 0$ (cas où V présente un puits plus profond que tous les autres), une solution approchée de l'équation (16) est :

$$g(n,t) = e^{-\mu(n_1).t}.\bar{g}_s(n) \qquad (18)$$

Dans le cas où g correspond aux éléments de matrice $\rho_{N,N+1}$, la partie réelle de μ représente (d'après l'expression (8) du champ électrique) la constante de temps d'un amortissement exponentiel de l'amplitude moyenne du champ dans la cavité. Comme nous nous sommes placés au-delà du seuil d'oscillation, cette

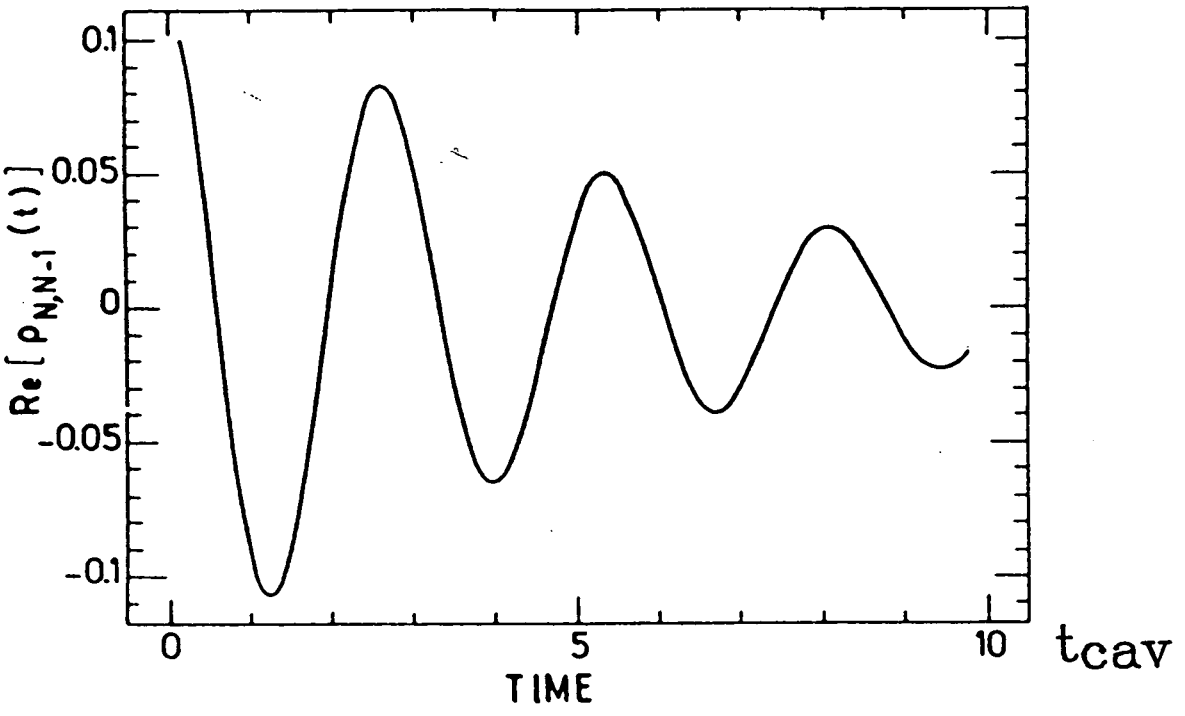


Figure III.10

amplitude moyenne nulle ne correspond pas à un champ nul mais à un champ de phase complètement indéterminée. La partie réelle de μ représente donc la constante de diffusion de phase du champ produit par le maser.

Notre modèle permet le calcul du coefficient μ aussi bien pour le maser à deux photons que pour un oscillateur à un photon. Dans ce dernier cas, μ est réel et sa valeur est exactement la même [L. Davidovich et al. 1987] que dans la théorie habituelle du laser à un photon [M. Sargent et al. 1974].

Par contre, pour un maser à deux photons, μ est complexe :

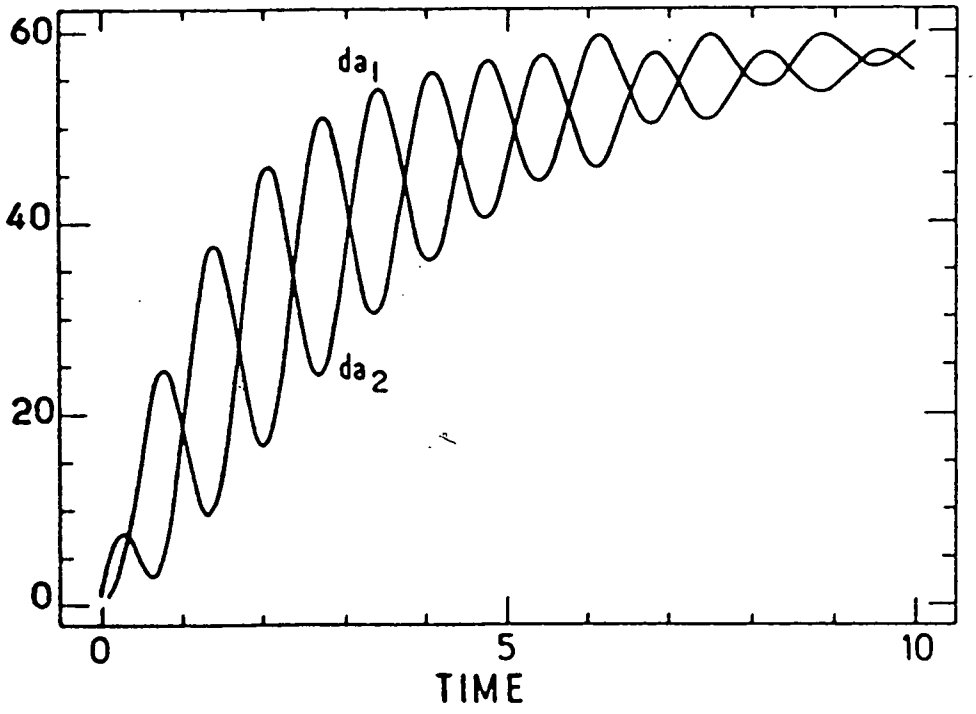
$$\mu = K + i\,\Delta\omega \tag{19}$$

La Fig. (III.10) présente l'évolution de $Re(\rho_{N,N-1})$ en fonction du temps. Le champ électrique (expression (8)) reste donc exponentiellement amorti avec la constante de temps 1/K, mais sa fréquence d'oscillation est décalée de $\Delta\omega$ par rapport à ω, la fréquence de résonance de la cavité vide. L'expression approchée du déplacement de fréquence $\Delta\omega$ est :

$$\Delta\omega = \frac{\Omega_{ei}^2}{\Delta}\,\frac{t_{int}}{t_{at}} \tag{20}$$

Le rapport t_{int}/t_{at} est le nombre d'atomes présents à la fois dans la cavité. $\Delta\omega$ est donc proportionnel à la densité atomique : c'est un effet d'indice. Son origine est le couplage non résonnant entre le champ et les transitions à un photon $|e\rangle \longrightarrow |i\rangle$ et $|i\rangle \longrightarrow |f\rangle$. Dans les lasers ordinaires, cet indice apparaît aussi lorsqu'on considère l'effet des transitions non résonnantes, mais il est en général négligeable. Par contre, dans notre cas, nous considérons un système à trois niveaux très particulier : les transitions $|e\rangle \longrightarrow |i\rangle$ et $|i\rangle \longrightarrow |f\rangle$ sont quasi-résonnantes avec le champ et l'effet d'indice qui leur correspond est beaucoup plus grand. $\Delta\omega$ peut même devenir supérieur à la largeur de la résonance de la cavité : il suffit de 8 atomes à la fois dans le résonateur pour

a)



b)

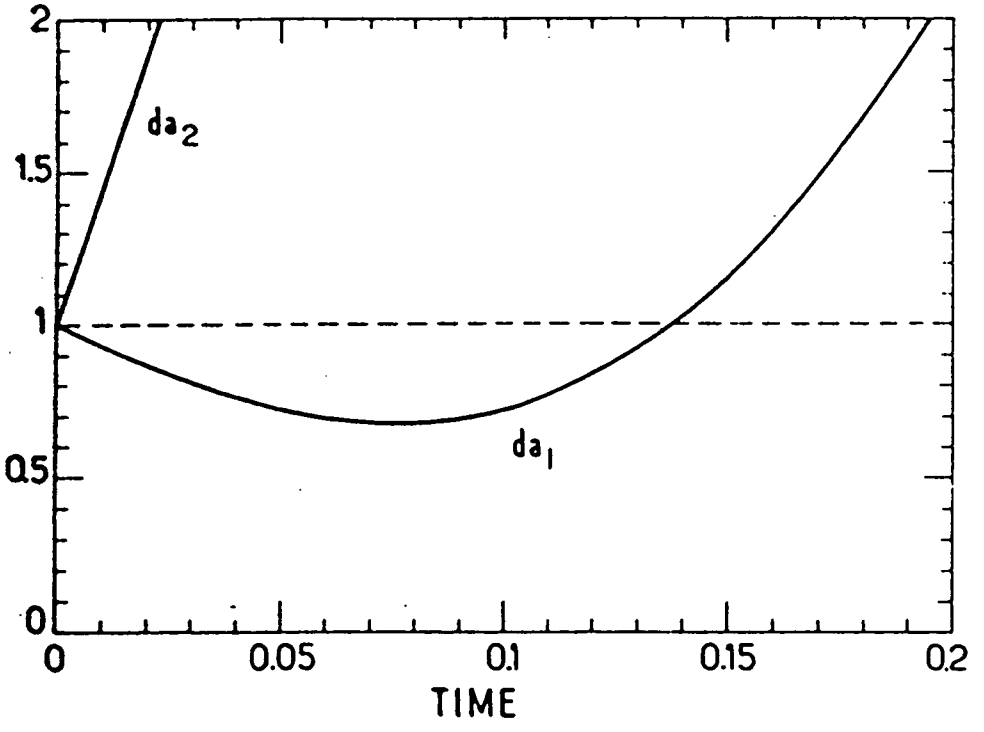


Figure III.11

produire un déplacement de 1 KHz ! Cela fait apparaître une limitation de notre modèle dans le cas des flux atomiques importants. Le calcul de l'évolution atomique supposait en effet le champ résonnant avec la transition à deux photons. Ceci ne reste vrai que si $\Delta\omega$ est petit devant la largeur de la résonance atomique (qui vaut 40 KHz). Cette valeur de $\Delta\omega$ correspond à l'indice de quelques centaines d'atomes dans la cavité. Une telle densité est en pratique accessible. Il sera donc nécessaire pour la description de masers "puissants" de prendre en compte cet effet dès le calcul de l'interaction atomique.

L'étude expérimentale du déplacement de la résonance de la cavité lorsqu'elle contient 1 à 250 atomes excités est actuellement en cours. La prise en compte de cet effet est en fait nécessaire à la compréhension des temps de démarrage très longs du maser car ceux-ci n'apparaissent que dans des conditions où, au voisinage du seuil, les flux atomiques sont de l'ordre de 10^7 at/s. Pour une telle valeur de l'intensité du jet, $\Delta\omega$ vaut expérimentalement 30 KHz $\times 2\pi$.

La constante d'amortissement, 1/K dont l'expression approchée vaut $4.(t_{cav}/t_{at}).t_{cav}$ devient supérieure à t_{cav} dès que $t_{cav}/t_{at} > 1/4$. Le spectre du champ du maser peut alors être beaucoup plus fin que celui de la résonance de la cavité vide.

La conséquence immédiate de la diffusion de la phase du champ du maser est qu'il est impossible, dans la description présente, de voir apparaître un état comprimé du champ en régime stationnaire. Les éléments non diagonaux de la matrice densité sont en effet tous nuls au bout d'un temps de l'ordre de 1/K. En régime stationnaire, la matrice densité est donc diagonale. Les variances ΔA_1 et ΔA_2 sont alors maximales et valent $2n_1 + 1$ où n_1 est le nombre moyen de photons dans le champ. Cependant, le calcul de ΔA_1 et ΔA_2 en fonction du temps lorsque le champ dans la cavité est initialement un état cohérent montre l'apparition d'une compression transitoire du champ dans le maser pour les temps courts devant la constante de diffusion de phase (Fig. III.11). Cela laisse espérer l'apparition d'un état comprimé du champ en régime stationnaire dès que l'on sera capable soit de mesurer, soit d'imposer la phase du

champ du maser. Cette phase connue à chaque instant pourra alors servir de référence pour l'étude des fluctuations du champ en régime stationnaire.

On peut dès à présent imaginer trois façons très simples d'introduire expérimentalement une information de phase dans notre système : ceci pourrait se faire soit par l'intermédiaire des atomes, en les injectant dans la cavité dans une superposition cohérente des états $|e\rangle$ et $|f\rangle$, soit directement par le champ en injectant depuis l'extérieur un champ cohérent de fréquence ω ou 2ω. Il peut sembler singulier d'envisager ce dernier cas car le couplage à un photon avec un champ de fréquence 2ω entre les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ est en principe nul. Il existe cependant un moyen simple de faire apparaître un tel couplage : il suffit d'appliquer aux atomes un petit champ électrique statique pour que les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ soient légèrement contaminés par leurs voisins de parité opposée. Le maser à deux photons deviendrait alors un oscillateur paramétrique.

L'étude théorique de ces possibilités reste un champ largement ouvert et beaucoup plus complexe que la description que nous venons de donner. Il apparaît en particulier dans l'équation pilote du champ des couplages non parallèles à la diagonale. Il n'est alors plus possible d'étudier séparément $\rho_{N,N}$, $\rho_{N,N+1}$ et $\rho_{N,N+2}$.

D'autre part, tous les résultats présentés ici concernent les fluctuations du champ à l'intérieur du maser. Les propriétés du champ rayonné vers l'extérieur sont susceptible d'être très différentes [B. Yurke 1984, M.J. Collet et al. 1985, A et B]. Leur étude reste un domaine complètement ouvert.

CONCLUSION

CONCLUSION

Les travaux théoriques que nous venons de présenter montrent que la réalisation d'un oscillateur microscopique fonctionnant sur une transition atomique à deux photons ouvre la voie à toute une classe d'expériences d'optique quantique nouvelles : étude d'effets dynamiques originaux, mise en évidence particulièrement claire de la quantification du champ à partir des oscillations de Rabi à deux photons et espoirs de générer des états comprimés du champ.

Dans ce système microscopique (tant par le flux atomique que par le nombre de photons), il est remarquable que le champ puisse être finalement bien décrit par une variable continue. Cela explique la richesse des effets physiques susceptibles de se manifester dans le micromaser à deux photons car il présente à la fois des propriétés microscopiques et macroscopiques.

La suite immédiate des travaux présentés ici sera une étude quantitative à la fois théorique et expérimentale des temps de latence très longs que l'on prévoit lors du démarrage du micromaser.

L'observation expérimentale de cet effet n'est possible que dans un régime où sa constante de temps est longue devant celle de notre détection. Celle-ci vaut environ 10 ms. Pour obtenir des temps de latence aussi longs, il faut être dans une situation où le seuil d'oscillation correspond à un flux atomique de 10^7 at/s environ (soit 250 atomes à la fois dans la cavité). Il est expérimentalement facile de se placer dans un tel régime : il suffit de réchauffer légèrement la cavité pour diminuer son facteur de qualité. Dans ces conditions, nous avons déjà observé des temps de latence supérieurs à plusieurs secondes. Leur interprétation théorique n'est cependant pas immédiate : ces observations correspondent à un flux atomique très intense pour lequel notre

modèle théorique ne s'applique plus. Deux effets que nous avons négligés jusqu'à présent peuvent devenir importants : la densité d'atomes excités dans la cavité est telle que l'indice du milieu est capable de déplacer notablement la fréquence de résonance (30 KHz environ). D'autre part, lorsque 250 atomes sont présents à la fois dans la cavité, ils sont susceptibles d'émettre 500 photons. Les effets d'émission collective peuvent alors jouer un rôle très important.

A plus long terme, nous projetons de mettre à profit l'exceptionnelle richesse du spectre du rubidium vis-à-vis des transitions à deux photons pour réaliser d'autres masers, à partir de transitions atomiques voisines. Selon le choix du paramètre Δ, il sera alors possible de mettre en évidence de façon particulièrement nette certains des effets que nous venons de présenter.

Pour la transition à deux photons 39 s $\longrightarrow$ 38 s, $\Delta/2\pi$ ne vaut que 0,5 MHz, le couplage à deux photons est alors si fort qu'il suffit d'un seul photon dans la cavité pour produire pendant le temps de vol d'un atome un angle de Rabi égal à π. Nous serions alors dans des conditions idéales pour l'étude du brouillage et de la réapparition des oscillations de Rabi à deux photons en fonction du temps d'interaction avec un champ contenant très peu de photons. Cela nécessiterait la réalisation de nouvelles cavités résonnantes à 74,386 GHz mais surtout la mise en place d'une excitation atomique capable de sélectionner une seule classe de vitesses atomiques pour pouvoir choisir et faire varier de façon contrôlée le temps d'interaction atome-champ. Une telle excitation est en principe facile à réaliser en dirigeant un des faisceaux lasers parallèlement au jet atomique. Les diodes lasers ont un spectre suffisamment fin pour que l'effet Doppler permette le choix de la classe de vitesse excitée. Dans une telle expérience, c'est l'aspect microscopique de notre système qui serait privilégié : le flux atomique au seuil serait de l'ordre de $1/t_{cav} \approx 2500$ at/s seulement.

Nous pouvons aussi choisir de nous orienter vers des

masers plus macroscopiques pour la génération de champs relativement intenses dont la détection directe deviendrait possible. On ouvrirait alors la voie à l'étude expérimentale des propriétés statistiques du champ produit par un oscillateur à deux photons. La transition $40\ p_{3/2} \longrightarrow 39\ p_{3/2}$ semble particulièrement intéressante dans cette perspective. Le niveau relais (40 s) est alors très désaccordé ($\Delta/2\pi$ = 2,7 GHz). Les effets à un photon resteront donc négligeables même pour des champs micro-ondes produits assez intenses. L'excitation atomique actuelle permettrait déjà d'atteindre le seuil d'oscillation de ce maser. Une cavité (ν = 65,706 GHz) est en cours de réalisation. Il serait cependant sans doute nécessaire et très intéressant de produire des champs encore plus intenses. Deux solutions s'offrent alors à nous : augmenter soit l'efficacité du dernier échelon laser (à l'aide de diodes plus puissantes qui existent maintenant), soit la densité atomique dans le jet par une méthode de refroidissement laser des vitesses atomiques transverses. Pour cela nous utiliserions une "mélasse optique" placée juste à la sortie du four.

Ces deux nouvelles expériences pourraient aussi nécessiter l'utilisation d'un jet d'atomes ralentis pour obtenir des temps d'interaction atome-champ très longs. La mise en place d'un ralentissement laser du jet est en pratique tout à fait envisageable.

Ajoutons enfin qu'avec le système actuel, quelques tours de vis suffisent à accorder la cavité sur la transition à un photon $39\ p \longrightarrow 39\ s$. Le micromaser à deux photons est donc immédiatement convertible en micromaser à un photon.

Ces perspectives expérimentales visent toutes à une étude très fine des propriétés fondamentales non classiques de l'interaction atome-champ ou du rayonnement dans le cas particulièrement intéressant d'une interaction à deux photons. Elles reposent sur la mise en oeuvre de techniques laser nouvelles qui doivent permettre un contrôle très fin des degrés de liberté externes des atomes. Nous comptons pour cela tirer le plus grand parti d'une utilisation exclusive de diodes laser car leur usage

quotidien nous a donné la preuve de leur très grande versatilité.

Les systèmes atomes de Rydberg en cavité sont donc en passe de devenir un domaine d'investigation très riche pour les théoriciens de l'électrodynamique en cavité : ce sont des réalisations idéales de systèmes à deux niveaux couplés à un seul mode du champ, où même les degrés de liberté externes des atomes vont pouvoir être contrôlés. Jusqu'à présent, toutes les informations sur l'état du système atome-champ étaient obtenues à partir de la mesure de l'état atomique après interaction. Cette mesure permet non seulement la connaissance du nombre moyen de photons mais aussi celle de sa statistique : la transformée de Fourier du signal d'oscillation de Rabi en fonction du temps est le reflet exact de cette statistique. Cependant, la possibilité d'une mesure directe du champ reste très attrayante dans la perspective de l'étude de ses fluctuations quantiques. Il s'agit là d'un domaine d'investigation théorique encore largement ouvert.

REFERENCES

INTRODUCTION

- D.S. Bethune, J.R. Lankard and P.P. Sorokin, J. Chem. Phys. 69, 2076 (1978).

- M. Brune, J.M. Raimond and S. Haroche, Phys. Rev. A 35, 154 (1987).

- M. Brune, J.M. Raimond, P. Goy, L. Davidovich and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. 59, 1899 (1987).

- R.L. Carman and W.H. Lowdermilk, Phys. Rev. Lett. 33, 190 (1974).

- R.L. Carman, Phys. Rev. A 12, 1048 (1975).

- L.E. Estes, L.M. Narducci and B. Shammas, Let. al Nuovo Cimento 1, 775 (1971).

- P. Filipowicz, J. Javanainen and P. Meystre, Phys. Rev. A 34, 3077 (1986) and Opt. Comm. 58, 327 (1986).

- J.H. Glownia, G. Arjavalingam and P.P. Sorokin, J. Chem. Phys. 82, 4086 (1985).

- P. Goy, J.M. Raimond, M. Gross and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. 50, 1903 (1983).

- M. Gross, P. Goy, C. Fabre, S. Haroche and J.M. Raimond, Phys. Rev. Lett. 43, 343 (1979).

- H. Haken, Synergetics, 3rd Edn. Springer Verlag (1983).

- T. Hoshimiya, A. Yamagishi, N. Tanno and H. Inaba, Jpn. J. Appl. Phys. 17, 2177 (1978).

- R.G. Hulet, E.S. Hilfer and D. Kleppner, Phys. Rev. Lett. 55, 2137 (1985).

- Y. Kaluzny, P. Goy, M. Gross, J.M. Raimond and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. 51, 1175 (1983).

- H. Komine and R.L. Byer, Appl. Phys. Lett. 27, 300 (1975).

- V.S. Letokhov, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. 7, 284 (1968) [JETP Lett. 7, 221 (1968)].

- M.M.T. Loy, Phys. Rev. Lett. 41, 473 (1978).

- L. Lugiato, H. Walther, M.O. Scully, Phys. Rev. A 36, 740 (1987).

- D. Meschede, H. Walther and G. Müller, Phys. Rev. Lett. 54, 551 (1985).

- P. Meystre, Optics Lett. 12, 669 (1987).

- L. Moi, P. Goy, M. Gross, J.M. Raimond, C. Fabre and S. Haroche, Phys. Rev. A 27, 2043 (1983).

- L.M. Narducci, W.W. Eidson, P. Furcinitti and D.C. Eteson, Phys. Rev. A 16, 1665 (1977).

- N. Nayak and B. Mohanty, Phys. Rev. A 19, 1204 (1979).

- B. Nikolaus, D.Z. Zhang and P. Toschek, Phys. Rev. Lett. 47, 171 (1981).

- A.M. Prokhorov, Science 149, 828 (1965).

- J.M. Raimond, P. Goy, M. Gross, C. Fabre and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. 49, 1924 (1982).

- G. Rempe, H. Walther and N. Klein, Phys. rev. Lett. 58, 353 (1987).

- H. Schlemmer, D. Frölich and H. Welling, Opt. Comm. 32, 141 (1980).

- P.P. Sorokin and N. Braslau, IBM J. Res. Develop. 8, 177 (1964).

- Z.C. Wang and H. Haken, Z. Phys. B 55, 361 and 56, 77 and 83 (1984).

- A. Yariv, Quantum Electronics, Wiley (New York), (1967).

- H.P. Yuen, Appl. Phys. Lett. 26, 505 (1975 A).

- H.P. Yuen, Physics Lett. 51A, 1 (1975 B) and Phys. Rev. A 13, 226 (1976).

CHAPITRE I

- A.A. Abrikosov, L.P. Gor'kov, I.M. Khalatnikov, J. Exptl, Phys. (U.S.S.R.) 35, 205-275 (1958).

- J. Bardeen, L.N. Cooper and J.R. Schrieffer, "Theory of Supraconductivity", Phys. Review 108, 1175 (1957).

- R.G. Brewer and E.L. Hahn, Phys. Rev. A 11, 1641 (1975).

- M. Brune, J.M. Raimond, P. Goy, L. Davidovich and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. 56, 1899 (1987).

- C. Cohen-Tannoudji, S. Reynaud, J. Phys. B 10, 345 (1977).

- L.A. Coldren and S.W. Corzine, IEE J. of Quantum Electronics Q.E 23, 903 (1987).

- T.W. Ducas, M.G. Littman, R.R. Freeman and D. Kleppner, Phys. Rev. lett. 21, 279 (1975).

- C. Fabre, S. Haroche, P. Goy, Phys. Rev. A 22, 778 (1980).

- P. Filipowicz, P. Meystre, G. Rempe and H. Walther, Opt. Acta 32, 1105 (1985).

- P. Filipowicz, J. Javanainen and P. Meystre, Phys. Rev. A 34, 3077 (1986).

- T.F. Gallagher, L. Humphrey, W.E. Cooke, R. Hill and S. Edelstein, Phys. Rev. A 16, 1098 (1977).

- J.A.C. Gallas, G. Leuchs, H. Walther and H. Figger, Advances in Atomic and Molecular Physics, édité par D.R. Bates et R. Bederson (Academic, Londres 1985), vol. 20.

- P. Goy, J.M. Raimond, G. Vitrant, C. Fabre, S. Haroche and M. Gross, Precision Measurements and Fundamental Constants II. Natl. Bur. Stand. (U.S), Spec. Publ. n° 617, édité par B.N. Taylor et W.D. Phillips (U.S GPA, Washington, D.C., 1982) (A).

- P. Goy, J.M. Raimond, G. Vitrant and S. Haroche, Phys. ReV. A 26, 2733 (1982) (B).

- P. Goy, J.M. Raimond, M. Gross and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. 50 1903 (1983).

- P. Goy, J. Liang, M. Gross and S. Haroche, Phys. Rev. A 34, 2889 (1986).

- D. Grischkowsky, M.M.T. Loy and P.F. Liao, Phys. Rev. A 12, 2514 (1975).

- J. Halbritter, "On RF-Residual Losses in Supraconducting Cavities", Proc. second Workshop on RF Supercond., Geneva, 23-27 (1984).

- J. Halbritter, "On Electric Surface Impedance", Zeitschrift für Physik 13, Springer Verlag, 19 ff (1978).

- J. Halbritter, "Uber Hochfrequenzverluste R_E verursacht durch elektrische Hf-Felder senkrecht zur Oberfläche", Kernforschungszentrum Karlsruhe, IEKP II/III (1977).

- S. Haroche, New Trends in Atomic Physics, édité par G. Grynberg et R. Stora (North-Holland, Amsterdam 1984).

- S. Haroche and J.M. raimond, Advances in Atomic and Molecular Physics, édité par D.R. Bates et R. Bederson (Academic, Londres, 1985) vol. 20.

- W. Jianglin, Z. Hanyi, W. Qun, Z. Bingkun, IEE J. of Quantum Electronics, QE 23, 1005 (1987).

- N. Klein, Externer Bericht, Wuppertal (1985).

- U. Laustroer, U. Van Rienen, T. Weiland, URMEL and URMRL-T user guide. DESY M-87-03, February 1987.

- D. Meschede, Dissertation, Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians Universität München, (1984).

- D. Meschede, H. Walthers and G. Müller, Phys. Rev. Lett. 54, 551 (1985).

- L. Moi, P. Goy, M. Gross, J.M. Raimond, C. Fabre and S. Haroche, Phys. Rev. A 27, 2043 (1983).

- G. Müller, Dissertation, Universität gesamthochschule Wuppertal, Wuppertal (1983).

- M. Takatsuji, Phys. Rev. A 11, 619 (1975).

- J.L. Vialle, H. Duong, J. Phys. B 12, 1407 (1979).

- O. Yamamoto, H. Hayashi, N. Miyauchi, S. Maei, H. Kawanishi, T. Morimoto, S. Yamamoto, S. Yano and T. Hijikata, J. Appl. Phys. 61, 870 (1987).

CHAPITRE II

- M. Brune, J.M. Raimond and S. Haroche, Phys. Rev. A 35, 154 (1987).

- D. Grischkowsky, M.M.T. Loy and P.H. Liao, Phys. Rev. A 12, 2514 (1975).

- H. Haken, Synergetics, 3rd Edn. Springer Verlag (1983).

- T. Hoshimiya, A. Yamagishi, N. Tanno and H. Inaba, Jpn. J. Appl. Phys. 17, 2177 (1978).

- N. Nayak and B.K. Mohanty, Phys. Rev. A 19, 1204 (1979).

- M. Takatsuji, Phys. Rev. A 11, 619 (1975).

- Z.C. Wang and H. Haken, Z. Phys. B 55, 361 et 56, 77 et 83 (1984).

- H.I. Yoo and J.H. Eberly, Phys. Rep. 118, 239 (1985).

CHAPITRE III

- M. Brune, J.M. Raimond and S. Haroche, Phys. Rev. A 35, 154 (1987).

- M.J. Collet and C.W. Gardiner, Phys. Rev. A 31, 3761 (1985) A.

- M.J. Collet and D.F. Walls, Phys. Rev. A 32, 2887 (1985) B.

- C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud, J. Phys. B 10, 345 (1977).

- C. Cohen-Tannoudji and J. Dalibard, Eur. Phys. Lett. 1, 441 (1986).

- R.J. Cook and H.J. Kimble, Phys. Rev. Lett. 54, 1023 (1985).

- L. Davidovich, J.M. Raimond, M. Brune and S. Haroche, Phys. Rev. A 36, 3771 (1987).

- J.H. Eberly, N.B. Narozhny and J.J. Sanchez-Mondragon, Phys. Rev. Lett. 44, 1323 (1980).

- A. Faist, E. Geneux, P. Meystre and A. Quattropani, Helv. Phys. Acta. 45, 956 (1972).

- P. Filipowicz, J. Javanainen and P. Meystre, Phys. Rev. A 34, 3077 (1986).

- R.J. Glauber, " Optical Coherence and Photon Statistics", Proceedings, l'Ecole d'été des Houches, éd. par C. de Witt, A. Blandin, C. Cohen-Tannoudji (Gordon and Breach, New-York 1965).

- A. Heidmann, J.M. Raimond and S. Reynaud, Phys. Rev. Lett. 54, 326 (1985) A.

- A. Heidmann, J.M. Raimond, S. reynaud and N. Zagury, Opt. Comm. 54, 189 (1985) B.

- J. Javanainen, Phys. Rev. A 33, 2121 (1986).

- M.G. Van Kampen "Stochastic processes in Physics and Chemistry", North Holland, Amsterdam (1981).

- L.P. Knight and P.M. Radmore, Phys. Rev. A 26, 676 (1982).

- M. Sargent III, M.O. Scully and W.E. Lamb, Laser Physics (Addison-Wesley, Reading, Mass., 1974).

- H.I. Yoo and J.H. Eberly, Phys. Rep. 118, 239 (1985).

- H.P. Yuen, Phys. Lett. 51A, 1 (1975).

- H.P. Yuen, Phys. Rev. A 13, 226 (1976).

- B. Yurke, Phys. Rev. A 29, 408 (1984).

- D.F. Walls, Nature (London) 306, 141 (1983).

- L.A. Wu, H.J. Kimble, J.L. Hall and H. Wu, Phys. Rev. Lett. 57, 2520 (1986).

APPENDICE A

DÉTAILS TECHNIQUES SUR LA RÉALISATION

DE LA CAVITÉ

APPENDICE A

REALISATION ET ACCORD D'UNE CAVITE SUPRACONDUCTRICE CLOSE DANS LE DOMAINE MILLIMETRIQUE

La figure (A.1) rappelle la forme de la cavité réalisée : c'est un cylindre de diamètre D = 7,75 mm et de longueur L = 7,5 mm. Il est constitué de deux pièces en niobium soudées après usinage et polissage chimique. Nous nous intéressons au mode TE 121. Sa fréquence de résonance vaut environ 68 GHz. La cavité est couplée à l'extérieur par deux trous cylindriques de diamètre d = 1,6 mm et de longueur 4,65 mm chacun. Ces trous débouchent dans deux guides d'ondes qui permettent la mesure des caractéristiques des résonances par transmission micro-onde.

La précision à atteindre pour la fréquence de résonance ($\sim$ qq 10 kHz) correspond à un contrôle des dimensions de la cavité à 10 Å près. Les effets à prendre en compte pour atteindre ce but sont multiples : tolérences d'usinage ($\sim$ qq μm), déformations lors de la soudure ($\sim$ qq 10 μm), contraction thermique du niobium entre 25°C et 2K. Nous disposons de deux méthodes d'accord : attaque chimique contrôlée et déformations mécaniques (élastiques ou inélastiques).

1) - Réalisation et accord

Nous avons d'abord réalisé un premier ensemble de cavité qui nous a permis de déterminer l'effet de chacune des étapes de la fabrication sur la fréquence de résonance. Ces cavités étaient volontairement surcouplées (longueur des trous de couplage : 1,8 mm) pour que l'on puisse mesurer leurs résonances même à température ambiante, dans l'état conducteur normal. Elles nous ont

permis de déterminer quelles devaient être les dimensions mécaniques initiales (après usinage) des cavités définitives et d'étalonner la vitesse des attaques chimiques qui permettent de rattrapper les tolérences d'usinage. L'effet de ces attaques étant un agrandissement, les cavités initialement réalisées doivent être légèrement trop petites.

La première étape de la fabrication est l'usinage suivi d'un premier polissage chimique. Son rôle est d'éliminer une couche de métal d'environ 100 µm. Cette couche serait un mauvais supraconducteur à cause de sa surface très perturbée par l'usinage. Le polissage est réalisé dans un mélange acide (1 : 1 : 1 HF 40 %, HNO_3 65 %, H_3PO_4 85 %). On contrôle cette opération en mesurant la cavité avec un Palmer. Avant ce polissage on prend la précaution de bien dégraisser la cavité en la plongeant dans un bain chaud (~ 90°C) de détergent puis dans de l'eau pure (le tout dans une cuve à ultrasons).

Les cavités sont ensuite soudées sous vide par faisceau électronique. Une fusion totale du métal sur une profondeur de 0,5 mm est obtenue avec un courant de 5 mA et une tension de 90 kV. On procède alors à une série d'attaques chimiques et de mesures à froid de la fréquence de résonance. Le mélange acide utilisé ici est plus lent que le précédent (1 : 1 : 2, HF, HNO_3, H_3PO_4). La vitesse d'attaque est de 4,4 µm/min à 20°C (soit 40 MHz/min). La précision d'accord obtenue est de l'ordre de 5 MHz.

Lors de chacune de ces opérations, il est important de bien rincer la cavité dans de l'eau déminéralisée et de la sécher après chaque traitement chimique.

La dernière étape consiste à améliorer la qualité de la surface du supraconducteur en recuisant la cavité à 1800°C pendant trois heures sous ultra-vide. Ce traitement évapore les impuretés résiduelles déposées dans la cavité et recristalise le métal. On a ainsi gagné environ un facteur 3 sur le facteur de qualité à 1,7 K. Le recuit ne modifie pas notablement la fréquence de résonance : l'effet est inférieur à celui des inévitables déformations

mécaniques de la cavité lors de son montage dans le dispositif expérimental. L'accord fin sur la fréquence atomique est obtenu par déformation mécanique en exerçant une force sur les parois minces ($\sim$ 0,5 mm) de la cavité. La gamme d'accord réversible obtenue est de l'ordre de 100 MHz grâce à un système de lames déformables actionnées par des vis placées sous vide. La sensibilité est de l'ordre du kHz (déformation de 1 Å!). Lorsqu'en plus on utilise des cales piezoélectriques, on a une possibilité de balayage continu sur une gamme de 100 kHz avec une précision de 100 Hz.

Cette dernière opération d'accord par déformation doit être réalisée lors de chaque utilisation de la cavité. En particulier, il est préférable de relacher les contraintes lorsqu'on réchauffe la cavité : le niobium étant relativement "mou" à température ambiante, il risquerait peu à peu de se déformer de façon irréversible.

2) - Mesures micro-onde

Les mesures micro-ondes à 68 GHz sont obtenues avec un analyseur scalaire de réseau (MMSA 27-135-Sielux). Cet appareil permet la mesure de coefficient de transmission avec une grande dynamique (> 50 dB) pour des fréquences comprises entre 27 et 155 GHz. La précision est de 0,1 dB jusqu'à - 30 dB et de 0,3 dB jusqu'à - 50 dB. Dans notre cas, nous disposions en fait d'une dynamique de 80 dB. Lorsqu'on associe la source interne (Yig) à un stabilisateur bande X (Mos 3106 Microwave Systems) on obtient une largeur d'analyse de 200 Hz (à - 3 dB) à 68 GHz. On peut donc mesurer directement des facteurs de qualité supérieurs à 10^8. Les fréquences sont déterminées de façon absolue avec une précision de 6 Hz par un compteur bande X muni d'une référence externe à 10 MHz (récepteur d'ondes longues Adret 4801 A).

La micro-onde est injectée dans la cavité par l'un des deux guides d'onde ($\varnothing$ = 4 mm). Ceux-ci sont des trous borgnes dont la profondeur ($\sim \lambda/4$ par rapport à l'axe du cylindre) est choisie

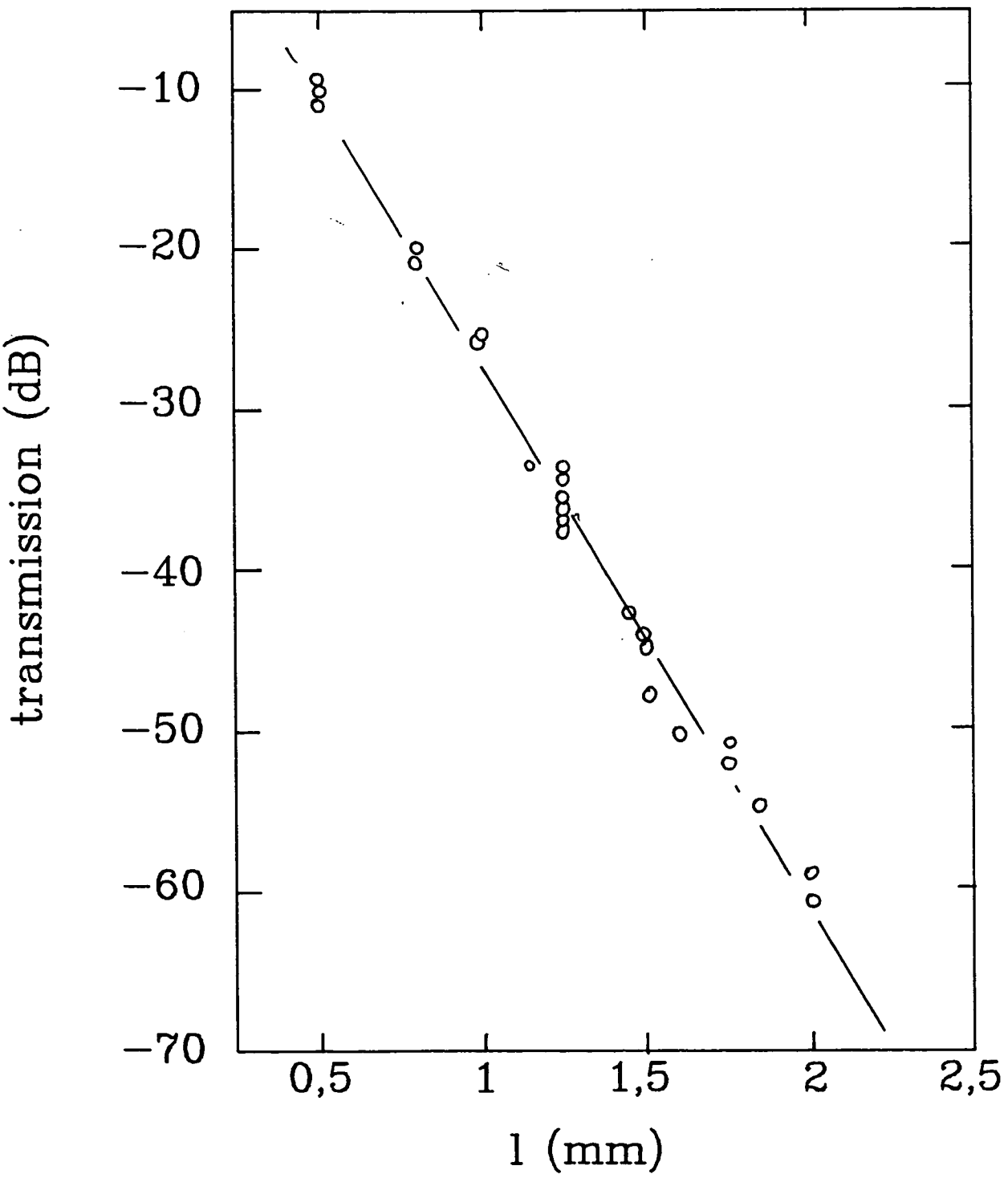


figure A.2

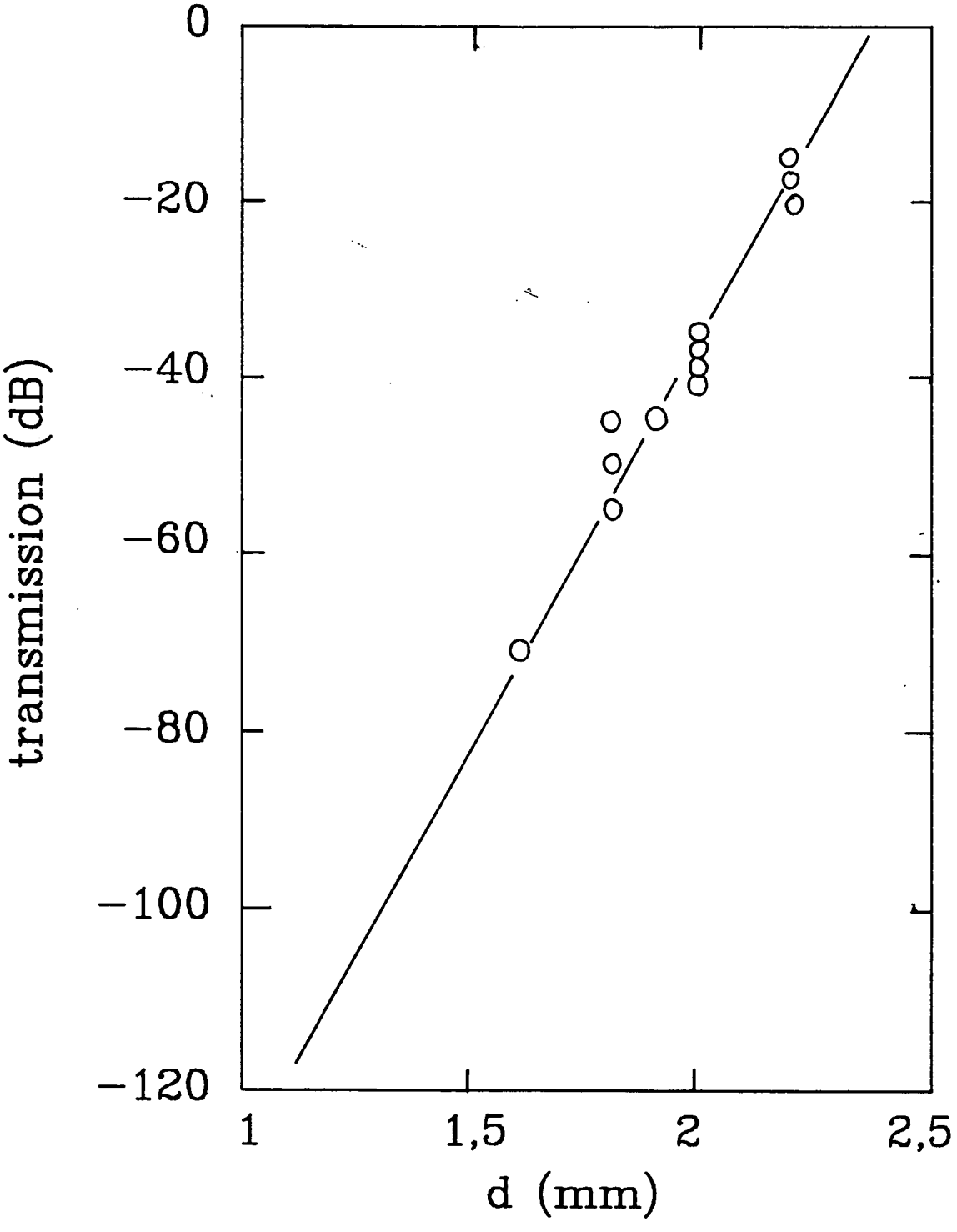


figure A.3

pour optimiser le couplage avec les trous de diamètre d (Fig. A.1). La seule polarisation couplée à la cavité est orthogonale à la figure. La micro-onde pénètre dans la cavité à travers les petits tubes cylindriques qui sont des guides d'onde sous coupure (à 68 GHz). Ils produisent donc une atténuation. Le couplage de sortie est symétrique. Il introduit la même atténuation. Le coefficient de transmission total T dépend de ces facteurs d'atténuation. Ils peuvent être caractérisés par des facteurs de qualité de couplage Q_1 (entrée) et Q_2 (sortie) (dans notre géométrie symétrique $Q_1 = Q_2$). La valeur mesurée du facteur de qualité Q_L dépend de Q_1 et Q_2 par la loi :

$$Q_L^{-1} = Q_0^{-1} + 2\ Q_1^{-1}$$

Q_0 serait le facteur de qualité intrinsèque d'une cavité sans couplage avec l'extérieur. La transmission totale T de la cavité est :

$$T = 4\ (Q_L / Q_1)^2$$

A Q_0 donné, T ne dépend que de Q_1 et donc que du diamètre d et de la longueur l des trous de couplage (si d est assez petit). Des mesures à température ambiante sur des cavités en laiton ont permis la mesure de T en fonction de d et l (Fig. A.2 et 3).

La présence des trous de couplage augmente le volume effectif de la cavité. Par conséquent, la fréqunece de résonance est plus faible que pour une cavité cylindrique complètement fermée. La dépendance de la fréquence de résonance en fonction de d à $l = \infty$ peut être calculée [URMEL]. Elle a été mesurée pour des transmissions suffisamment faibles pour que cette approximation ($l = \infty$) soit valable. La figure (A.4) présente les résultats correspondants. L'accord entre les mesures et le calcul est correct.

Nous utilisons un cryostat à ^4He où la température de la cavité ne peut guère descendre au-dessous de 2 K. La meilleure valeur possible de Q_0 dans ces conditions est de 2.10^8. Cette valeur peut être soit calculée par la théorie B.C.S. [A. Septier et

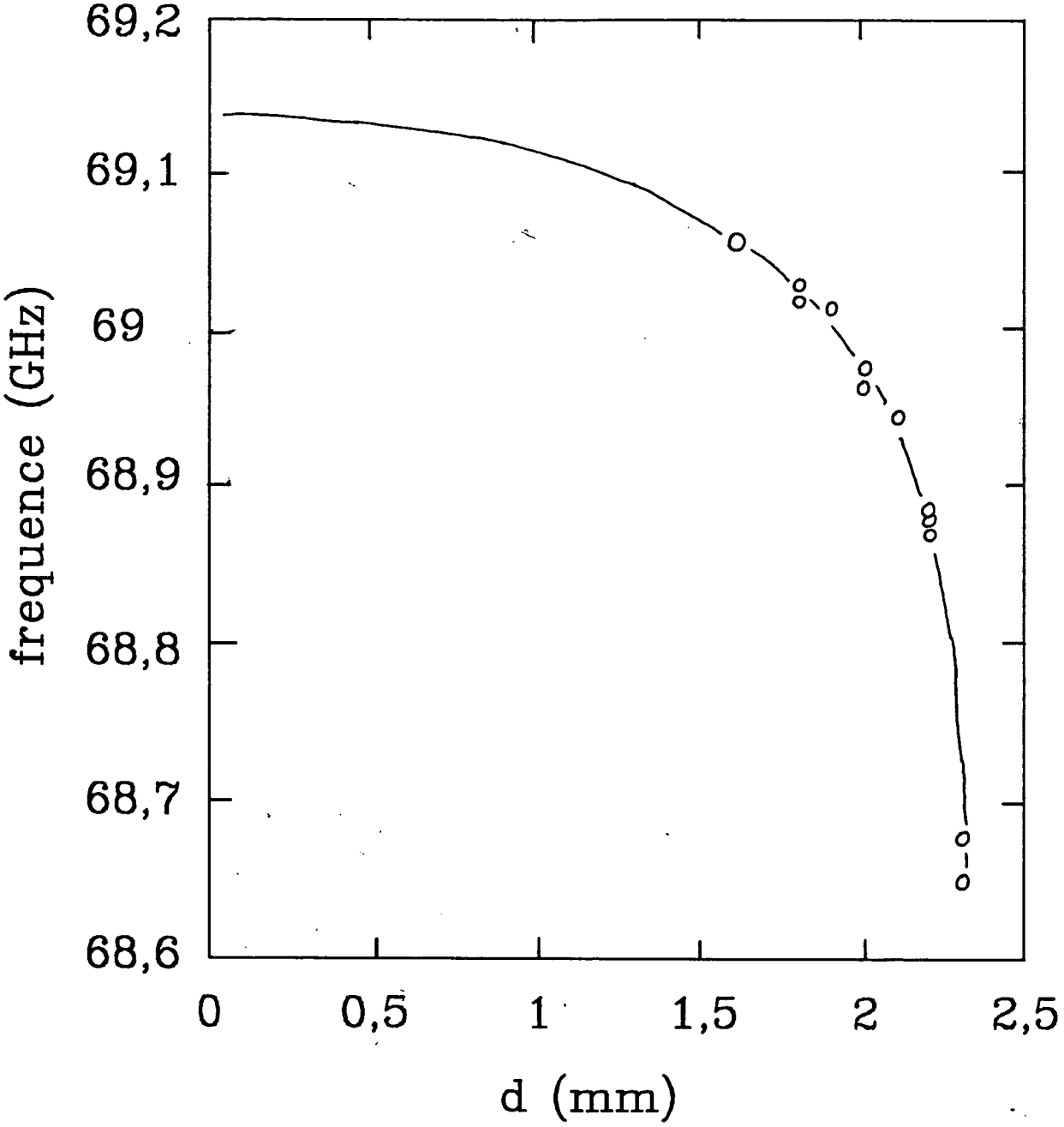


figure A.4

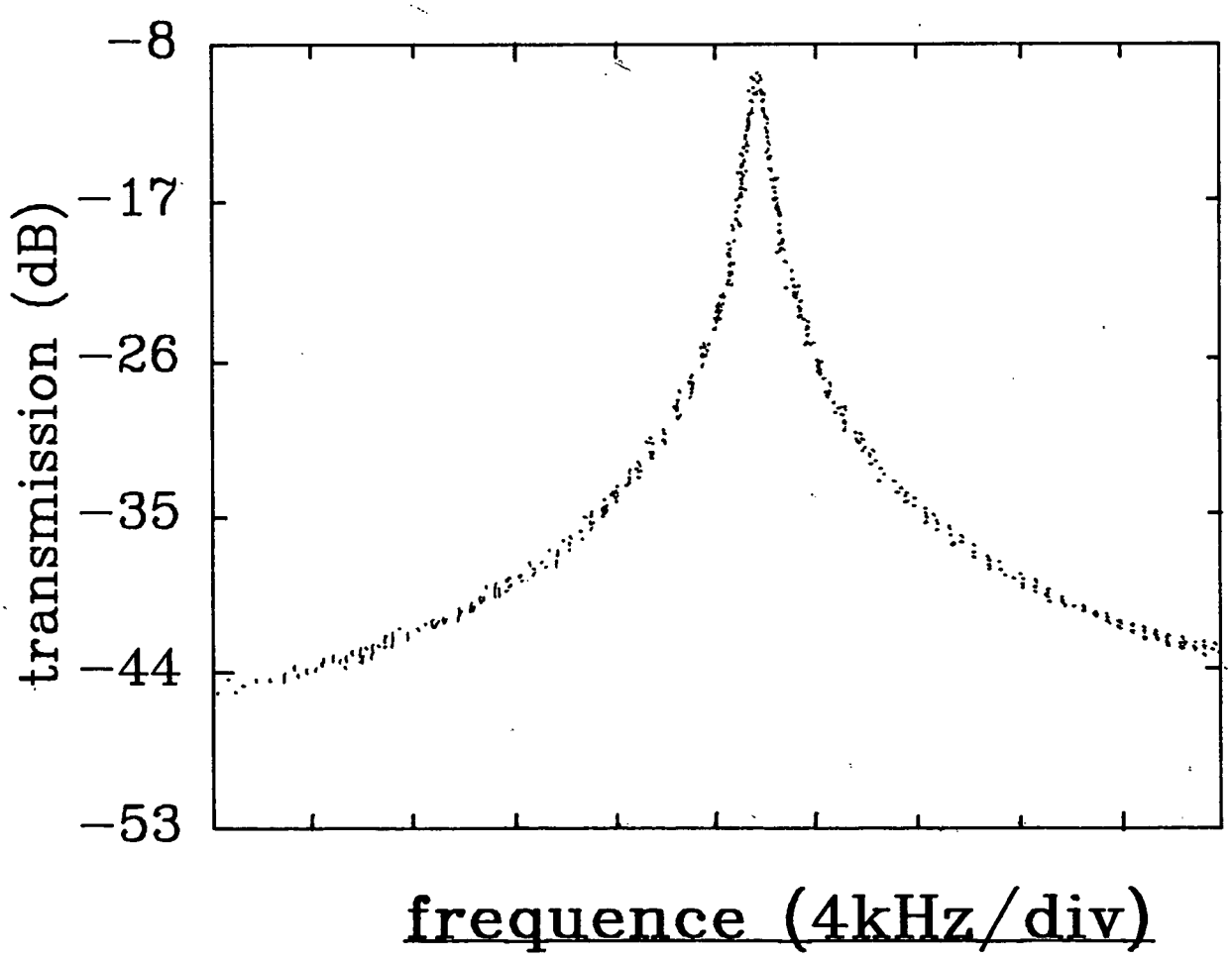


figure A.5

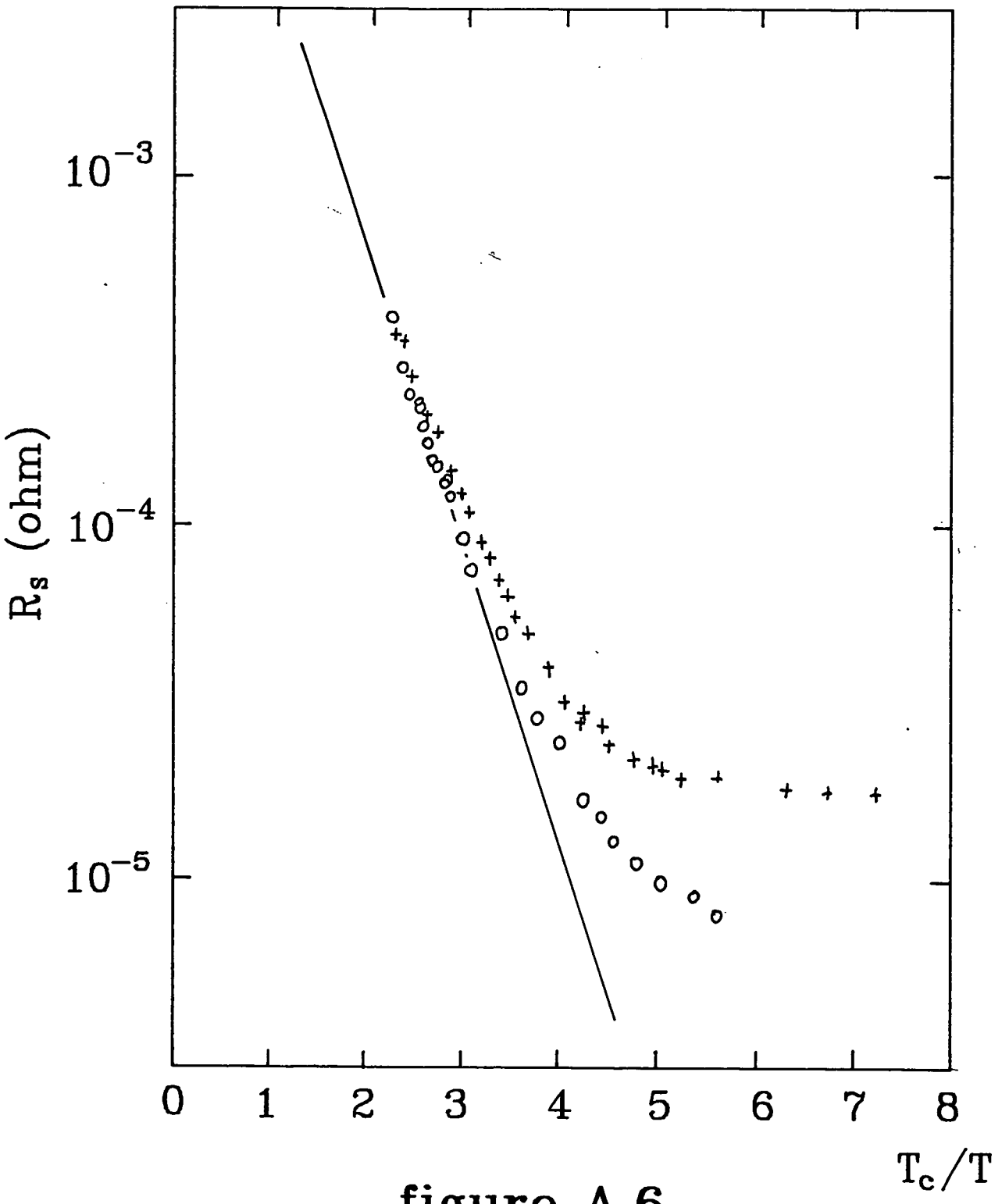


figure A.6

TABLE 1

SUMMARY OF THE PERFORMANCES MEASURED AT 1.7 K ON THE 4 CAVITIES

CAVITY	FREQUENCY (MHz)	Q_L (10^8 UNITS)	Q_I (10^8 UNITS)	Q_0 (10^8 UNITS)	before annealing	after annealing
1B	68 360	0.28	10	0.3	X	
		2	10	3.3		X
2B	68 319	0.38	5.8	0.44	X	
		0.9	5.8	1.3		X
3B	68 407	0.28	1	0.64	X	
4B	68 399	1	6	1.5	X	

al. 1977] soit déterminée par interpolation entre des expériences précédentes à 21 et 80 GHz [G. Müller 1983]. Par extrapolation des résultats des fig. (A.2 et A.3) où Q_0 valait environ 5000 (laiton) on trouve que pour d = 1,76 mm et l = 4,65 mm avec une cavité en niobium à 2 K ($Q_0 = 2.10^8$), T vaut 10^{-2}. Dans ces conditions, $Q_i = 18.Q_0$ et Q_L est très voisin de Q_0 ($Q_L = 0,9\ Q_0$). Enfin, c'est une valeur suffisante de T pour être mesurable. Par contre, à 300 K, $Q_0 = 1850$ pour le niobium et alors T = - 113 dB, ce n'est pas mesurable. Le refroidissement à l'hélium est donc nécessaire à la caractérisation de ces cavités.

La Fig. (A.5) présente la transmission d'une cavité à 1.7 K en fonction de la fréquence. La valeur mesurée de Q_L, déduite de la largeur de résonance est 9.10^7 la transmission est - 10 dB. A partir de ces données, on a $Q_i = 5.8\ 10^8$ et $Q_0 = 1.3\ 10^8$.

La Fig. (6) présente la variation de la résistance de surface du supraconducteur $R_s = G/Q_0$ (G = 1010 Ω pour le mode TE_{121}) en fonction de la température pour cette cavité avant traitement thermique. La droite représente la valeur B.C.S. théorique. Les valeurs expérimentales en sont très proches jusqu'à 4 K. Au-delà, la valeur observée de Q est plus faible que la limite théorique. La résistance résiduelle vaut 18 μΩ.

Les cercles représentent les valeurs obtenues après traitement thermique pour la même cavité. La résistance résiduelle a diminué notablement : elle vaut maintenant environ 6 μΩ. ($Q_0 = 1.7\ 10^8$). La valeur mesurée Q_L est principalement limitée par le couplage. Les valeurs optimales de Q pour 4 cavités différentes sont présentées table 1.

La possibilité pratique de réalisation de cavités supraconductrices accordées précisément autour de 70 GHz avec des facteurs de qualités proches de la valeur B.C.S. à 2 K est mainetnant établie. Outre les micromasers, ces cavités pourraient aussi trouver des applications intéressantes dans le domaine de la technologie micro-onde par exemple pour la construction de sources de grande pureté spectrace. Celles-ci sont très utiles pour les systèmes de synthèse de fréquences optiques.

REFERENCES

. U. Laustroer, U. Van Riemen and T. Weiland, URMEL and URMRL-T user guide, DESY M-87-03, February 1987.

. G. Müller, Thèses, Bergische Universität gesamthochschule, Wuppertal, West-Germany, WUB-DI-83-1, June 1983.

. A. Septier, Nguyen Tuong Viet, Journal of Phys., Scientific Instrument, vol. 10 (1977).

APPENDICE B

Atome Habillé à Deux Photons

Oscillations de Rabi

APPENDICE B

I. - Calcul quantique du couplage à deux photons dans un système à trois niveaux

Nous appliquons ici le formalisme de l'atome habillé à un système atomique à trois niveaux où apparaît une transition à deux photons : deux niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ (énergies E_e et E_f) de même parité couplés au second ordre de la théorie des perturbations par l'intermédiaire d'un niveau $|i\rangle$ de parité opposée. Ce dernier est caractérisé par $\hbar\Delta = E_i - (E_e + E_f)/2$, son désaccord en énergie avec la moyenne des énergies de $|e\rangle$ et $|f\rangle$. Nous supposons, par souci de simplicité que le champ électrique est résonnant avec la transition à deux photons $|e\rangle \longrightarrow |f\rangle$ soit :

$$2\hbar\omega = (E_e - E_f) \tag{1}$$

Nous calculons les valeurs propres et les états propres du hamiltonien du système couplé atome-champ. Ce dernier s'écrit :

$$H = H_{at} + H_{ph} + H_{int} \tag{2}$$

H_{at}, H_{ph} et H_{int} correspondent respectivement aux atomes, au champ et au terme d'interaction. Dans le système atomique à trois niveaux $|e\rangle$, $|i\rangle$ et $|f\rangle$ couplé à un champ de fréquence ω ces termes s'écrivent :

$$\begin{cases} H_{at} = E_e\,|e\rangle\langle e| + E_i\,|i\rangle\langle i| + E_f\,|f\rangle\langle f| \\ H_{ph} = \hbar\omega[a^+a + \tfrac{1}{2}] \\ H_{int} = \hbar\Omega_{ei}[a|e\rangle\langle i| + a^+|i\rangle\langle e|] + \hbar\Omega_{if}[a|i\rangle\langle f| + a^+|f\rangle\langle i|] \end{cases} \tag{3}$$

a et a^+ sont les opérateurs de création et d'annihilation de photons. Ω_{ei} et Ω_{if} représentent les constantes de couplage dipolaire électrique $|e\rangle \longrightarrow |i\rangle$ et $|i\rangle \longrightarrow |f\rangle$. Dans H_{int}, nous avons fait l'approximation des ondes tournantes. Elle revient à

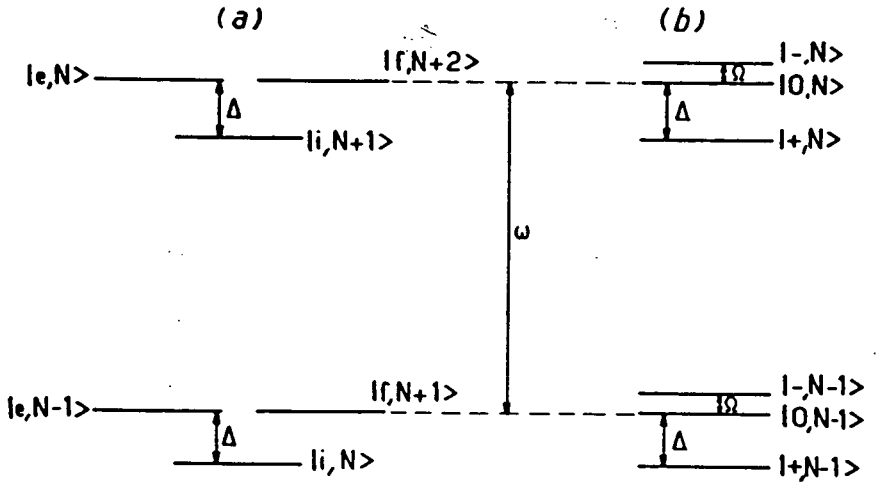


figure B.1

négliger les termes non résonnants comme $a^+|e\rangle\langle i|$, $a|i\rangle\langle e|$...

La figure B.1.a représente les niveaux d'énergie du hamiltonien $H_{at} + H_{ph}$ (le couplage H_{int} est négligé ici). Ce diagramme d'énergies est constitué d'une succession de triplets $|e,N\rangle$, $|i,N+1\rangle$, $|f,N+2\rangle$ séparés les uns des autres par l'énergie d'un photon $\hbar\omega$. N,N+1 et N+2 représentent les nombres de photons. Le champ étant supposé résonnant, $|e,N\rangle$ et $|f,N+2\rangle$ sont dégénérés. $|i,N+1\rangle$ est à distance $\hbar\Delta \ll \hbar\omega$ de ces deux niveaux. H_{int} ne couple les états qu'à l'intérieur d'une multiplicité $|e,N\rangle$, $|i,N+1\rangle$, $|f,N+2\rangle$. H se réduit donc à une série de matrices 3 x 3 ($H^{(N)}$) dans chacune de ces multiplicités :

$$H^{(N)} = \begin{bmatrix} N\hbar\omega & \Omega_{ei}\sqrt{N+1} & 0 \\ \Omega_{ei}\sqrt{N+1} & \Delta+N\hbar\omega & \Omega_{if}\sqrt{N+2} \\ 0 & \Omega_{if}\sqrt{N+2} & N\hbar\omega \end{bmatrix} \qquad (4)$$

Nous avons choisi le zéro d'énergie en fixant $E_e = -\hbar\omega/2$. Par diagonalisation de cette matrice, nous trouvons les énergies propres et les états propres ("états habillés") du système couplé atome + champ :

$$\begin{cases} E_{\pm}(N) = N\hbar\omega + \dfrac{\hbar\Delta}{2}\left[1 \pm \sqrt{1 + \dfrac{4\Omega(N)}{\Delta}}\right] = N\hbar\omega + \hbar\,\Omega_{\pm}(N) & (5.a) \\ E_0(N) = N\hbar\omega & (5.b) \end{cases}$$

et :

$$\begin{cases} |\pm,N\rangle = \dfrac{1}{K_{\pm}}\left[\dfrac{\Omega_{ei}\sqrt{N+1}}{\Omega_{\pm}(N)}\,|e,N\rangle + |i,N+1\rangle + \dfrac{\Omega_{if}\sqrt{N+2}}{\Omega_{\pm}(N)}\,|f,N+2\rangle\right] & (6.a) \\ |0,N\rangle = \dfrac{\Omega_{if}\sqrt{N+2}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|e,N\rangle - \dfrac{\Omega_{ei}\sqrt{N+1}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|f,N+2\rangle & (6.b) \end{cases}$$

Nous définissons les fréquences $\Omega(N)$ et $\Omega_{\pm}(N)$ par :

$$\Omega(N) = [\Omega_{e\,i}^2 (N+1) + \Omega_{i\,f}^2 (N+2)]/\Delta \qquad (7.a)$$

$$\Omega_{\pm}(N) = \frac{\Delta}{2}\left(1 \pm \sqrt{1 + \frac{4\Omega(N)}{\Delta}}\right) \qquad (7.b)$$

et les constantes de normalisation $K_{\pm}$:

$$K_{\pm} = \left[1 + \frac{1}{1 + \frac{\Delta}{2\Omega(N)}\left[1 \pm \sqrt{1 + 4\,\frac{\Omega(N)}{\Delta}}\right]}\right]^{1/2} \qquad (8)$$

Dans la situation qui nous intéresse en pratique, nous pouvons utiliser le fait que $\Omega(N)/\Delta$ est très petit ($\sim 10^{-4}$ avec $N = 50$) pour introduire des expressions simplifiées beaucoup plus parlantes qui sont de très bonnes approximations des solutions exactes. Un développement au premier ordre en puissances de $\Omega(N)/\Delta$ donne :

$$\begin{cases} E_+ \approx \hbar\Delta \\ E_- \approx -\hbar\Omega(N) \\ E_0 = 0 \end{cases} \qquad (9)$$

et :

$$\begin{cases} |+N\rangle \approx \dfrac{\Omega_{e\,i}\sqrt{N+1}}{\Delta}\,|e,N\rangle + |i,N+1\rangle + \dfrac{\Omega_{i\,f}\sqrt{N+2}}{\Delta}\,|f,N+2\rangle \\ |-N\rangle \simeq \dfrac{\Omega_{e\,i}\sqrt{N+1}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|e,N\rangle + \dfrac{\Omega_{i\,f}\sqrt{N+2}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|f,N+2\rangle \\ |0,N\rangle = \dfrac{\Omega_{i\,f}\sqrt{N+2}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|e,N\rangle - \dfrac{\Omega_{e\,i}\sqrt{N+1}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|f,N+2\rangle \end{cases} \qquad (10)$$

Les énergies habillées de la multiplicité N sont représentées fig. B.1.b.

Supposons maintenant que nous introduisions soudainement

à l'instant t = 0 un atome dans l'état |e> dans un champ de N photons. L'état initial du système atome + champ est alors |e,N>. C'est (dans l'approximation $\Omega(N)/\Delta \ll 1$) une combinaison linéaire des deux états habillés |-,N> et |0,N> seulement :

$$|e,N\rangle = \frac{\Omega_{e\,i}\sqrt{N+1}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|-,N\rangle + \frac{\Omega_{i\,f}\sqrt{N+2}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|0,N\rangle \qquad (11)$$

L'écart en énergie entre les deux états |-,N> et |0,N> est $\hbar.\Omega(N)$. L'état du système à l'instant t est donc :

$$|e,N(t)\rangle = \frac{\Omega_{e\,i}\sqrt{N+1}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,e^{i\,\Omega(N)\,t}\,|-,N\rangle + \frac{\Omega_{i\,f}\sqrt{N+2}}{\sqrt{\Delta.\Omega(N)}}\,|0,N\rangle \qquad (12)$$

La probabilité de trouver à l'instant t l'atome dans l'état |e> vaut alors :

$$P_e^N(t) = |\langle e,N|e,N(t)\rangle|^2$$

$$= 1 - \frac{2\Omega_{e\,i}^2\,\Omega_{i\,f}^2\,(N+1)(N+2)}{\Delta^2\;\Omega^2(N)}\,[1 - \cos\,\Omega(N).t] \qquad (13)$$

celle de le trouver dans l'état |f> s'en déduit immédiatement :

$$P_f^N(t) = 1 - P_e^N(t) \qquad (14)$$

Dans l'approximation faite ici, l'expression de l'évolution du système à trois niveaux se réduit à une oscillation de Rabi de fréquence $\Omega(N)/2\pi$ entre les deux seuls niveaux |e> et |f>. Le contraste de ces oscillations est inférieur à 1. Ceci est directement relié aux déplacements Stark des niveaux |e> et |f> induit par les N photons du champ :

$$\Delta E_e = - \frac{\Omega_{e\,i}^2 (N+1)}{\Delta}$$

$$\Delta E_f = - \frac{\Omega_{i\,f}^2 (N+2)}{\Delta} \qquad (15)$$

Dans le cas général, $\Omega_{e\,i}^2 (N+1) \neq \Omega_{i\,f}^2 (N+2)$. Lorsqu'un atome est plongé dans un champ de N photons, le champ de fréquence ω n'est donc pas exactement résonnant avec la transition $|e\rangle \longrightarrow |f\rangle$.

II. - Brouillage et réapparition des oscillations de Rabi à deux photons dans un champ cohérent

Considérons maintenant un atome dans l'état $|e\rangle$ plongé à l'instant $t = 0$ dans un champ dont le nombre de photons est représenté par la distribution de probabilité $\pi(N)$. La probabilité d'avoir l'atome dans l'état $|e\rangle$ à l'instant t vaut alors :

$$P_e(t) = \sum_N \pi(N) . P_e^N(t) \qquad (16)$$

$P_e^N(t)$ étant donné par l'expression (13).

La fréquence de Rabi à deux photons $\Omega(N)$ peut s'écrire :

$$\Omega(N) = A + B.N \qquad (17)$$

avec :

$$A = (\Omega_{e\,i}^2 + 2\,\Omega_{i\,f}^2)/\Delta$$

$$B = (\Omega_{e\,i}^2 + \Omega_{i\,f}^2)/\Delta \qquad (18)$$

A correspond à l'émission spontanée à deux photons. B.N est le terme d'émission stimulée, il est grand devant A dès que N vaut

quelques unités. Pour N grand, la pulsation de Rabi à deux photons est donc essentiellement proportionnelle à N. Il s'ensuit que $P_e(t)$ est le développement en série de Fourier d'une fonction quasi-périodique de pseudo-période $2\pi/B$. Ce caractère périodique apparaît clairement lorsqu'on néglige les différences entre N, N+1 et N+2 dans l'équation (13) et A par rapport à B.N dans $\Omega(N)$. L'expression approchée de $P_e^N(t)$ est alors :

$$P_e^N(t) \approx 1 - \frac{2\Omega_{ei}^2 \Omega_{if}^2}{[\Omega_{ei}^2 + \Omega_{if}^2]^2} [1 - \cos B N t] \qquad (19)$$

Pour un champ cohérent, de $\bar{N}$ photons en moyenne, dans un état de Glauber, la distribution du nombre de photons est poissonnienne :

$$\pi(N) = e^{-\bar{N}} \frac{\bar{N}^N}{N!} \qquad (20)$$

$P_e(t)$ vaut alors :

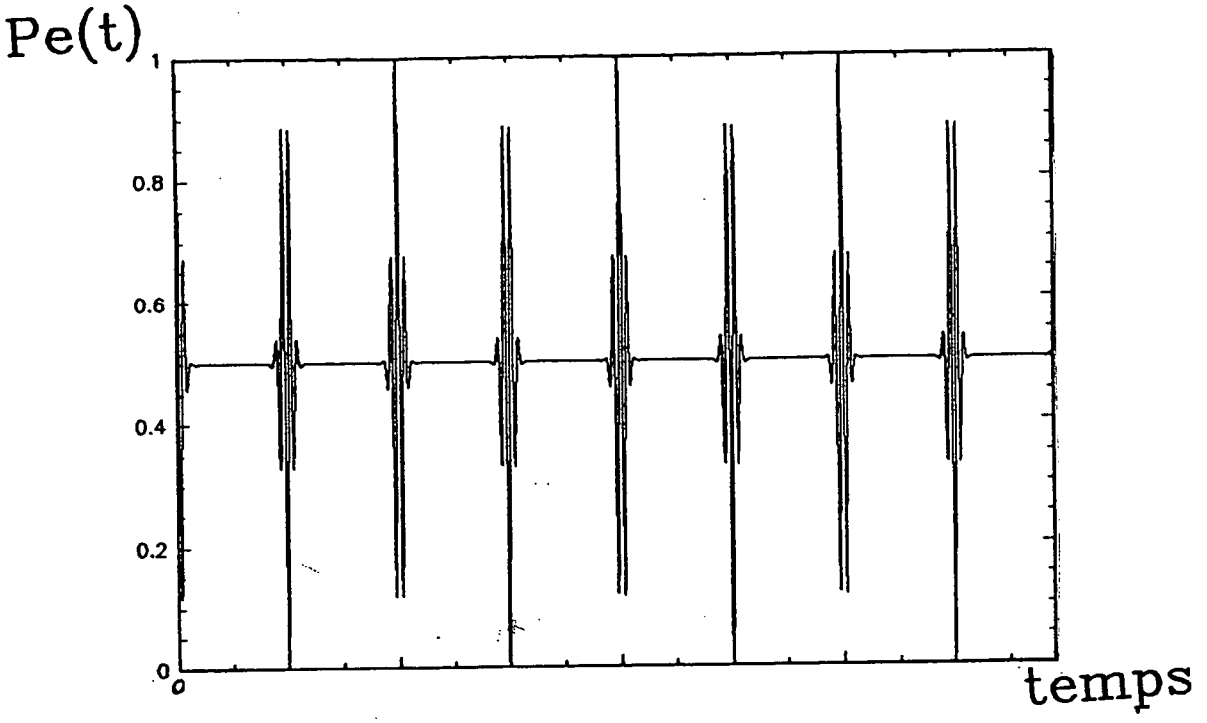
$$P_e(t) = 1 - \frac{2\Omega_{ei}^2 \Omega_{if}^2}{(\Omega_{ei}^2 + \Omega_{if}^2)^2} \left\{1 - e^{\bar{N}(\cos Bt - 1)} . \cos(\bar{N} . \sin Bt)\right\} \qquad (21)$$

Cette solution approchée est une fonction périodique du temps de période $2\pi/B$.

Nous avons représenté (Fig. B.2.a) la fonction périodique $P_e(t)$ pour un champ cohérent avec $\bar{N} = 50$ photons. Nous avons supposé $\Omega_{ei} = \Omega_{if}$, P_e oscille donc pratiquement de 0 à 1. Elle est très différente du signal d'oscillations de Rabi à un photon dans le même état du champ présenté Fig. (B.2.b). Ce dernier signal n'a pas le caractère périodique et simple des oscillations à deux photons car les fréquences de Rabi à un photon sont proportionnelles à $\sqrt{N}$. Elles n'ont donc pas entre elles de rapport fractionnaire simple et au bout de quelques brouillages, le signal devient chaotique.

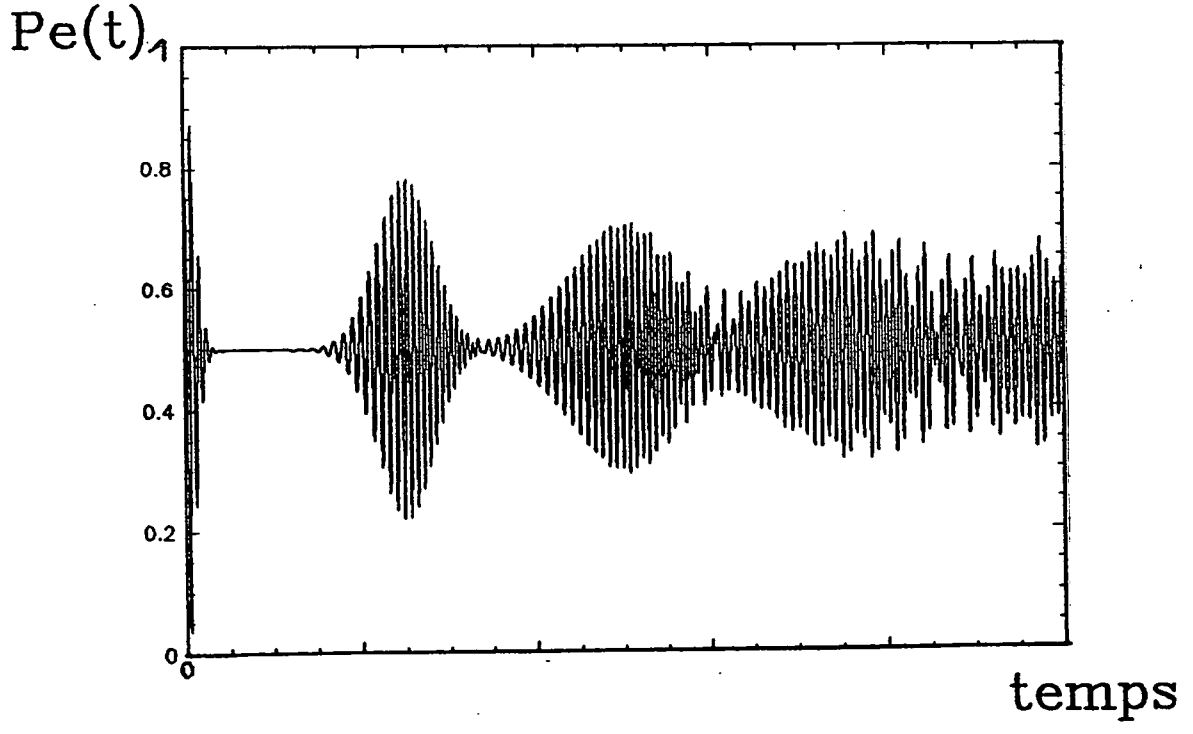
Le premier brouillage des oscillations à deux photons se

a)



2 photons

b)



1 photon

figure B.2

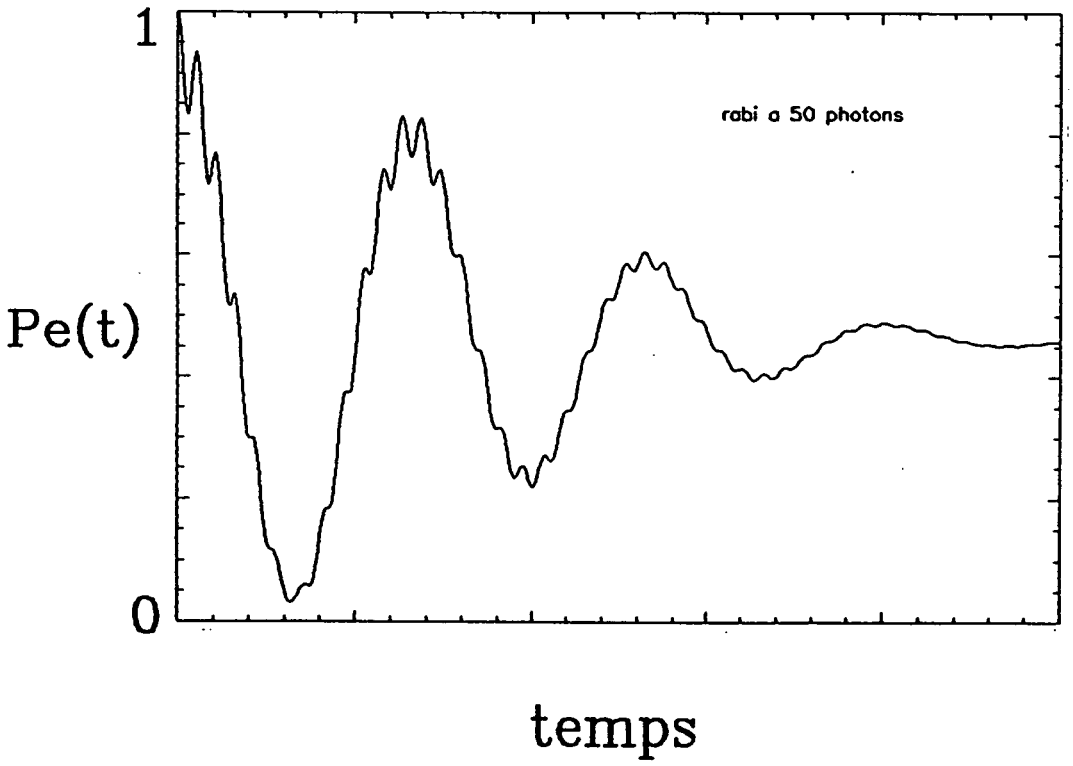


figure B.3

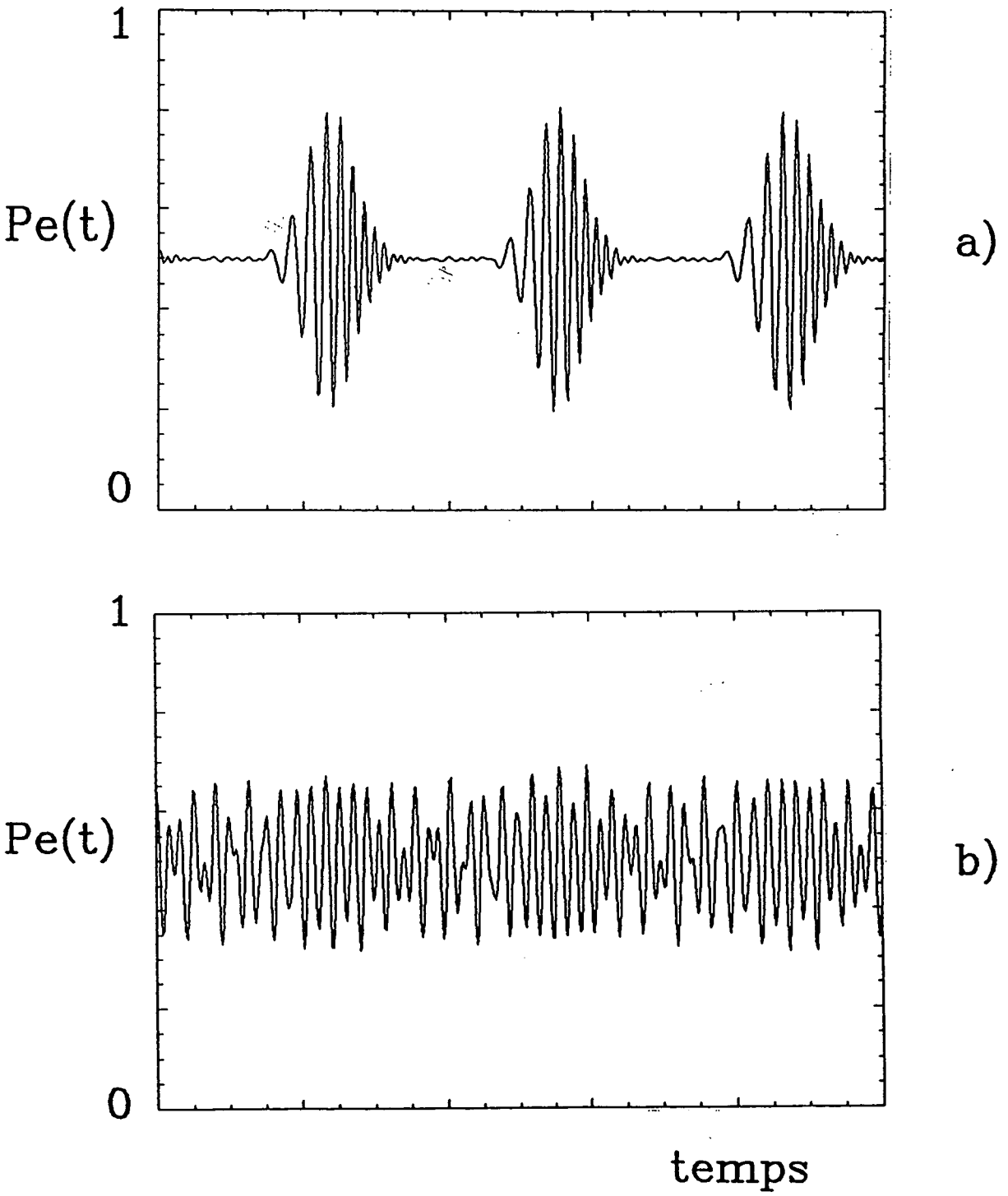


figure B.4

produit après un temps d'interaction de l'ordre de $1/(B\sqrt{\bar{N}})$. $B\sqrt{\bar{N}}$ est en effet la dispersion des fréquences de Rabi à considérer dans un état cohérent du champ. Ce brouillage apparaît après moins d'oscillations que dans le cas à un photon car les fluctuations de $\bar{N}$ (cas à deux photons) sont le double de celles de $\sqrt{\bar{N}}$ (cas à un photon). Le caractère périodique de la réapparition des oscillations est une propriété beaucoup plus frappante. Ces "bouffées" d'oscillations sont séparées par des périodes très nettes de "léthargie". Ce comportement est très différent de celui des oscillations de Rabi à un photon. Soulignons enfin que la période de réapparition des oscillations $2\pi/B$ est indépendante de $\bar{N}$ dans le cas à deux photons alors que pour une transition à un photon, le délai avant la première réapparition vaut $2\pi/(\Omega_{1\varphi}.\sqrt{\bar{N}})$.

Les termes négligés dans l'approximation (20) apparaissent clairement sur la solution exacte (Fig. B.3) : ce sont des oscillations rapides dont la fréquence est de l'ordre de Δ et dont l'amplitude, de l'ordre de $\Omega(N)/\Delta$, est très faible. Les termes d'émission spontanée qui avaient disparu lorsque nous avions remplacé N+1 et N+2 par N ont pour effet de déphaser peu à peu les différents termes entre eux pour les temps très longs et donc de faire disparaître la périodicité. Les Fig. (B.4.a.b.) représentent les 30ième et 120ième réapparitions calculées exactement avec $\bar{N} = 15$. Même pour des temps aussi longs, la quasi-périodicité du signal reste très nette.

Tous les effets que nous venons de présenter sont purement quantiques. Si $\bar{N}$ devient infini, nous devons retrouver la limite classique et donc voir la période de brouillage tendre vers l'infini. Cela n'est pas évident car la période de $P_e(t)$ est indépendante de $\bar{N}$. Pour faire tendre $\bar{N}$ vers l'infini, il faut en fait prendre des précautions car la solution approchée n'est valable que tant que le paramètre de saturation $z = \Omega_{ei}\sqrt{\bar{N}}//\Delta \approx \Omega_{if}\sqrt{\bar{N}}/\Delta$ reste petit devant 1.

Si on applique simplement aux atomes un champ de plus en

plus intense, l'approximation du système à deux niveaux cesse d'être valable et on ne peut guère parler d'oscillations de Rabi à deux photons.

On peut pourtant faire apparaître la limite classique du phénomène en maintenant z constant lorsqu'on augmente $\bar{N}$. $\Omega_{e\,i}/\Delta$ et $\Omega_{i\,f}/\Delta$ doivent alors tendre vers 0 comme $1/\sqrt{\bar{N}}$. En pratique, cela ne peut se faire qu'en diminuant le champ par photon $\mathcal{E}_0$ (les paramètres atomiques sont fixés). La période de réapparition des oscillations de Rabi s'écrit alors :

$$\frac{2\pi}{B} = \frac{\pi\Delta^2}{N\Omega_{e\,i}^2} \cdot \frac{N}{\Delta} = \frac{\pi}{z^2}\,\frac{\bar{N}}{\Delta} \qquad (22)$$

et tend vers l'infini avec $\bar{N}$. De la même façon, le temps de brouillage $1/B\sqrt{\bar{N}}$ tend vers l'infini comme $\sqrt{\bar{N}}$.

L'intérêt de cette étude des oscillations de Rabi pour une transition atomique à un ou deux photons est que la transformée de Fourier du signal d'oscillations (16) est le reflet exact de la statistique du nombre de photons $\pi(N)$. Les expériences sur les systèmes atomes de Rydberg + cavité rendent maintenant possible l'observation de ces effets et ouvrent donc la voie à une mesure expérimentale de $\pi(N)$. De par leur caractère quasi-périodique, les oscillations de Rabi à deux photons dans un champ cohérent semblent particulièrement bien adaptées à une telle étude. Le modèle que nous avons utilisé ici (expression (16)) s'applique bien entendu à toute distribution $\pi(N)$.

APPENDICE C

"QUANTUM THEORY

OF A TWO-PHOTON MICROMASER"

L. DAVIDOVICH, J.M. RAIMOND, M. BRUNE AND S. HAROCHE

PHYSICAL REVIEW A 36, 3771 (1987)

Quantum theory of a two-photon micromaser

L. Davidovich,* J. M. Raimond, M. Brune, and S. Haroche†
Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure, 24, rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France
(Received 26 May 1987)

We present the quantum theory of a microscopic maser operating on a degenerate two-photon transition between levels of the same parity. We derive both a master equation and a Fokker-Planck equation for this system, and show that quantum effects may have a substantial influence on the behavior of the maser. They modify the oscillation threshold and make external triggering of this maser unnecessary, whereas, according to semiclassical theory, such a triggering is required to start up the maser oscillation. We derive the phase-diffusion properties of the field and show that the diffusion coefficient is complex in this case, its imaginary part being associated with a frequency shift of the field inside the cavity. We show that, in steady state, the photon-number statistics is sub-Poissonian for a wide range of pumping rates.

I. INTRODUCTION

Lasers operating on two-photon transitions between levels of the same parity have attracted considerable interest in the last 20 years.[1–9] This interest has been based on several grounds. These devices would present a faster growth of the field density than would usual lasers, and would be able to produce any frequency within the range allowed by the equation $\omega=\omega_1+\omega_2$, where $\hbar\omega$ is the energy difference between the two levels and ω_1,ω_2 are the frequencies of the two photons generated by the transition.[2] In addition, it has been pointed out that the field emitted by these devices might present interesting statistical properties, leading to the generation of "squeezed" states of light.[5,6]

In spite of this interest, however, no realization of a continuous-wave two-photon oscillator has been made so far. This is due to the exceedingly small gain on two-photon transitions between low-lying levels, and to the existence of very strong competing nonlinear processes (multiple-wave mixing and stimulated Raman effect). Only a few articles reporting two-photon stimulated emission and gain have been published so far.[10]

On the other hand, the development of Rydberg atom physics in the last few years, as well as of high-Q superconducting cavities, has led to the construction of masers which operate at a very low threshold, down to one atom at a time in the cavity.[11,12] Several aspects of these devices, which have been called "micromasers," have been studied recently.[13–15] In particular, they have been shown to offer the possibility of an unambiguous realization of a two-photon continuous-wave oscillator.[15]

In this article, we develop the quantum theory of a two-photon micromaser. We introduce new techniques, which allow a rigorous derivation of Fokker-Planck-like equations both for the diagonal and nondiagonal elements of the reduced density matrix of the field inside the cavity, in the photon-number representation. These techniques, although very simple and of general applicability in laser theory, do not seem to have been noticed before. They are based on a continuous approximation of the finite-difference master equation for the reduced density matrix of the field, and are therefore valid in principle only for large photon numbers. However, comparison of their solutions with the results obtained by numerical integration of the master equation shows that they remain valid even for small photon numbers.

The equations thus obtained allow a simple physical picture of the time-dependent behavior of the system, as well as of the steady-state solution. In particular, they demonstrate the existence of two time scales in the evolution of the photon-number distribution (similar results have been found in Ref. 13). The short-time scale corresponds to the evolution of the initial distribution towards a "local equilibrium" peak, often exhibiting sub-Poissonian statistics. The long-time scale corresponds to the slow diffusion of this peak, leading to the steady-state solution which, if the pumping rate is sufficiently high, may present extra peaks. These peaks are associated with a multistable behavior of the micromaser in the semiclassical limit.[15]

When applied to the off-diagonal matrix elements in the photon-number representation, the same techniques lead in a straightforward way to the phase-diffusion coefficient, which turns out to be complex for the two-photon micromaser. Its imaginary part corresponds to a frequency shift of the field inside the cavity, which can be interpreted as a self-induced frequency pulling, present even when the incoming atoms are resonant with the cavity frequency, and due to the quadratic Stark shift induced on the initial and final atomic levels by the field of the cavity, through the coupling with intermediate states (this shift is inexistent for a two-level model).

Even though these approximate equations are extremely useful for getting physical insight into the behavior of the system, we do not use them to get the numerical results concerning the statistics of the field. These results will be obtained directly from the master equation, since this equation is valid for any number of photons and, besides a numerical solution of the Fokker-Planck equation would involve its descretization anyway, leading thus again to a finite-difference equa-

 ©1987 The American Physical Society

tion. The numerical results thus obtained thoroughly confirm the physical analysis based on the approximate differential equations.

The system we are going to consider is the same as in Ref. 15: a two-photon maser operating on a degenerate two-photon transition such that there is a relay level $|i\rangle$ nearly halfway between the initial state $|e\rangle$ and the final state $|f\rangle$. The two-photon transition amplitude is thus greatly enhanced.

The atoms, initially prepared in the excited state $|e\rangle$, cross a cavity tuned to the frequency

$$\omega=(E_e-E_f)/2\hbar\ , \tag{1.1}$$

where E_e and E_f are the energies of the initial and final states, respectively. In this process, each atom undergoes a coherent second-order Rabi nutation[16,17] between the levels $|e\rangle$ and $|f\rangle$.

The practical feasibility of this device has been demonstrated in Ref. 15. The transition of interest occurs between $nS_{1/2}$ and $(n-1)S_{1/2}$ states, being thus two-photon allowed and one-photon forbidden. For alkali-metal Rydberg atoms, the intermediate level $(n-1)P_{3/2}$ has a detuning with respect to $(E_e+E_f)/2$ which is much smaller than E_e-E_f. In particular, it is exceedingly small for $n=40$ in rudibium and $n=44$ in cesium, but yet sufficiently large so as to allow one to discriminate the direct two-photon $nS_{1/2}\rightarrow(n-1)S_{1/2}$ process from the resonant one-photon cascade $nS_{1/2}\rightarrow(n-1)P_{3/2}\rightarrow(n-1)S_{1/2}$. The level configuration in this case is shown in Fig. 1. As shown in Ref. 15, a two-photon maser operating on a degenerate two-photon transition between these levels in a $Q\sim10^8$ cavity should oscillate with only about one atom at a time in the cavity and a few tens of microwave photons. Under these conditions, quantum effects may play an important role in the behavior of the system.

In Sec. II and in Appendix A, we derive the master equation for the two-photon micromaser, after reviewing some of the results of Ref. 15. The semiclassical evolution is analyzed in Sec. III, and the stability of the zero-intensity point is considered. Both the effect of thermal photons and the velocity spread of the atoms in the cavity are taken into account. In Sec. IV, we derive a Fokker-Planck equation for the photon-number distribution, and we discuss the steady-state solution and the approach to equilibrium. We show in particular that, even though the semiclassical theory predicts that, at low temperatures, an external field is necessary to start the laser oscillation[15] (even if one is above the oscillation threshold), quantum theory on the contrary predicts that, above threshold, the system will start oscillating by itself, without need of a triggering field. In Sec. V, we study the phase diffusion of the field inside the cavity, and establish the existence of a self-induced frequency pulling. The method used for this study is quite general, and is applied in Appendix B to the Scully-Lamb model[18] as well as to the one-photon micromaser. In Sec. VI, we show that, under certain conditions, the field inside the cavity exhibits a sub-Poissonian statistics. Fluctuation properties of the field are discussed in Appendix C. Our conclusions are summarized in Sec. VII.

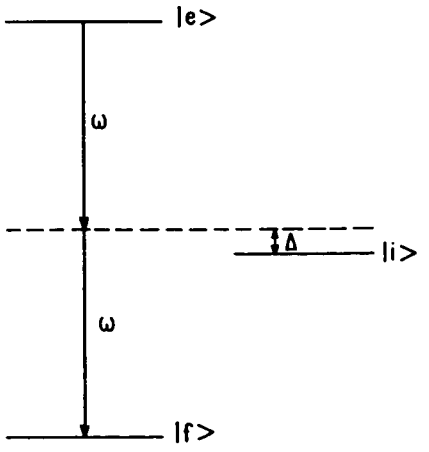


FIG. 1. Energy levels relevant to the two-photon micromaser.

II. THE MASTER EQUATION

The Hamiltonian corresponding to the system described in Sec. I can be written as[15]

$$H=H_{\rm at}+H_F+H_{\rm int}\ , \tag{2.1}$$

where $H_{\rm at}$, H_F, and $H_{\rm int}$ are, respectively, the atom, field, and interaction terms

$$H_{\rm at}=E_e\,|e\rangle\langle e|+E_i\,|i\rangle\langle i|+E_f\,|f\rangle\langle f|\ , \tag{2.2}$$

$$H_F=\hbar\omega(a^\dagger a+\tfrac{1}{2})\ , \tag{2.3}$$

$$H_{\rm int}=\hbar\Omega_{ei}(a\,|e\rangle\langle i|+a^\dagger|i\rangle\langle e|)+\hbar\Omega_{if}(a\,|i\rangle\langle f|+a^\dagger|f\rangle\langle i|)\ . \tag{2.4}$$

In these equations, a and $a^\dagger$ are the photon annihilation and creation operators, while Ω_{ei} and Ω_{if} are the elementary one-photon Rabi frequencies

$$\Omega_{ei}=-\langle e|D|i\rangle\mathcal{E}_0/\hbar\ , \tag{2.5}$$

$$\Omega_{if}=-\langle i|D|f\rangle\mathcal{E}_0/\hbar\ , \tag{2.6}$$

where $\langle e|D|i\rangle$ and $\langle i|D|f\rangle$ are the matrix elements of the electric dipole operator D and $\mathcal{E}_0$ is the field "per photon" in the cavity (of effective volume V)

$$\mathcal{E}_0=(\hbar\omega/2\epsilon_0V)^{1/2}\ . \tag{2.7}$$

In $H_{\rm int}$, one has made the rotating-wave approximation, which amounts to neglecting terms such as $a^\dagger|e\rangle\langle i|$ which couple levels whose energies differ by $E_e-E_i+\hbar\omega\simeq2\hbar\omega$. We also assume that the atom-field coupling is constant. This is generally not the case when the atoms move in an actual cavity mode. However, this variation can be taken into account by redefining $\mathcal{E}_0$.

The intermediate level $|i\rangle$ is detuned by the amount

$$\hbar\Delta=E_i-(E_e+E_f)/2 \tag{2.8}$$

from the average of the energies of the $|e\rangle$ and $|f\rangle$ states.

It has been shown in Refs. 15 and 17, using the dressed atom formalism, that the evolution of the system reduces to a two-level problem with an effective Rabi frequency of

$$\Omega(N)=\Omega_{ei}^2(2N+3)/\Delta\ , \tag{2.9}$$

where N is the number of photons in the cavity, so long as $|\Omega(N)/\Delta| \ll 1$ and $\Omega_{ei}\simeq\Omega_{if}$. These conditions are actually satisfied by the system described in Sec. I, and will be assumed throughout the paper. We may notice that $\Omega(0)$ does not vanish because of the two-photon spontaneous emission. If $|e,N\rangle$ and $|f,N+2\rangle$ represent the atomic states $|e\rangle$ and $|f\rangle$ with N and $N+2$ photons, respectively, in the cavity, and if $|e,N\rangle$ is the initial state of the system, we get then for the state of the system at time t

$$|e,N(t)\rangle = A(N,t)\,|e,N\rangle + B(N+2,t)\,|f,N+2\rangle\ , \tag{2.10}$$

where

$$A(N,t)=1+\frac{N+1}{2N+3}(e^{i\Omega(N)t}-1) \tag{2.11}$$

is the probability amplitude of finding the system in the initial state, and

$$B(N+2,t)=\frac{\sqrt{(N+2)(N+1)}}{2N+3}(e^{i\Omega(N)t}-1) \tag{2.12}$$

is the two-photon transition amplitude. Again, the fact that $A(0,t)\neq 1$ is due to spontaneous emission.

In order to write down the master equation corresponding to this system, we adopt the Scully and Lamb approach,[18] which is shown in Appendix A to be equivalent to the formulation in Ref. 13. In the interaction representation, the reduced density matrix for the field, $\rho(t)$, satisfies the equation of motion (under the conditions specified in Appendix A):

$$\dot\rho(t)=L\rho(t)+R[F(t_{\rm int})\rho(t)-\rho(t)]\ . \tag{2.13}$$

In this equation, $L\rho$ is associated with the loss mechanism

$$L\rho=\frac{\omega}{2Q}(N_T+1)(2a\rho a^\dagger - a^\dagger a\rho-\rho a^\dagger a) + \frac{\omega}{2Q}N_T(2a^\dagger\rho a - aa^\dagger\rho-\rho aa^\dagger)\ , \tag{2.14}$$

for a cavity with a quality factor Q and a thermal equilibrium mean-photon number given by N_T. The damping time of the cavity is $t_{\rm cav}=Q/\omega$.

The remaining term on the right-hand side of (2.13) stands for the atomic contribution to the reduced density operator of the field. The expression in square brackets is the variation of this operator due to the passage of a single atom through the cavity, during the interaction time $t_{\rm int}$, while $R=t_{\rm at}^{-1}$ is the atomic flux (average number of atoms arriving per unit time). As shown in Appendix A, writing Eq. (2.13) for the micromaser presupposes a Poissonian distribution for the arrival times of the incoming atoms in the cavity. The atomic contribution can be calculated in a well-known way[18] from Eq. (2.10) (we neglect atomic relaxation during $t_{\rm int}$):

$$\dot\rho_{NM}\,|_{\rm atom}=-R\rho_{NM}[1-A(N,t_{\rm int})A^*(M,t_{\rm int})] + R\rho_{N-2,M-2}B(N,t_{\rm int})B^*(M,t_{\rm int})\ . \tag{2.15}$$

For $N=M$, the first term on the right-hand side represents the depletion of the N-photon state due to atomic transitions from $|e\rangle$ to $|f\rangle$; the second term on the right-hand side represents the contribution to ρ_{NN} from downward atomic transitions starting from the (N−2)-photon state.

Adding to (2.15) the contribution of the loss term, we obtain the full master equation in the interaction picture:

$$\dot\rho_{NM}=-R\rho_{NM}[1-A(N,t_{\rm int})A^*(M,t_{\rm int})]+R\rho_{N-2,M-2}B(N,t_{\rm int})B^*(M,t_{\rm int}) - \frac{\omega}{2Q}[N+M+2N_T(N+M+1)]\rho_{NM}+\frac{\omega}{Q}(N_T+1)\sqrt{(N+1)(M+1)}\rho_{N+1,M+1}+\frac{\omega}{Q}N_T\sqrt{NM}\,\rho_{N-1,M-1}\ , \tag{2.16}$$

which assumes a monoenergetic beam of atoms, since $t_{\rm int}$, which depends on the atomic speed, is fixed.

If one allows a velocity distribution for the atoms, the master equation in the interaction representation becomes

$$\dot\rho_{NM}=-R\rho_{NM}\left[1-\int_0^\infty dt_{\rm int}P(t_{\rm int})A(N,t_{\rm int})A^*(M,t_{\rm int})\right] +R\rho_{N-2,M-2}\int_0^\infty dt_{\rm int}P(t_{\rm int})B(N,t_{\rm int})B^*(M,t_{\rm int})-\frac{\omega}{2Q}[N+M+2N_T(N+M+1)]\rho_{NM} +\frac{\omega}{Q}(N_T+1)\sqrt{(N+1)(M+1)}\rho_{N+1,M+1}+\frac{\omega}{Q}N_T\sqrt{NM}\,\rho_{N-1,M-1}\ , \tag{2.17}$$

where $P(t_{\rm int})$ is the interaction time distribution normalized so that

$$\int_0^\infty dt_{\rm int}P(t_{\rm int})=1\ . \tag{2.18}$$

The master equation (2.17) is the central equation of this paper. From it we will get both the semiclassical behavior as well as the specifically quantum effects.

III. THE SEMICLASSICAL EVOLUTION

From (2.17), we can obtain an equation for the time rate of change of $\langle N\rangle$:

$$\langle \dot{N} \rangle = \sum_N N \dot{\rho}_{NN}$$
$$= 2R \left\langle \left[1 - \int_0^\infty dt_{\rm int} P(t_{\rm int}) \mid A(N, t_{\rm int}) \mid^2 \right] \right\rangle$$
$$- \frac{\omega}{Q} \langle N - N_T \rangle \ . \tag{3.1}$$

The first term on the right-hand side represents the contribution to $\langle \dot{N} \rangle$ from the downward transitions. The factor 2 comes from the fact that each transition yields two photons. The last term is associated with dissipation by the cavity, which makes $\langle N \rangle$ approach N_T within $t_{\rm cav}$. The semiclassical approximation is obtained by setting $N \gg 1$ and by assuming that the mean-square deviation of N is small, so that

$$\langle \mid A(N, t_{\rm int}) \mid^2 \rangle \simeq \mid A(\langle N \rangle, t_{\rm int}) \mid^2 \ . \tag{3.2}$$

In the limit $N \gg 1$, expressions (2.9), (2.11), and (2.12) can be simplified, so that

$$A(N,t) \simeq \exp(i \Omega_{ei}^2 N t / \Delta) \cos(\Omega_{ei}^2 N t / \Delta) \ . \tag{3.3}$$

This approximation amounts to neglecting the contribution of spontaneous emission terms.

We now define as in Ref. 13,

$$N_{\rm ex} = R t_{\rm cav} = t_{\rm cav} / t_{\rm at} \ , \tag{3.4}$$

$N_{\rm ex}$ being the number of atoms passing through the cavity during its damping time. We also introduce a reduced interaction time $\phi_{\rm int}$ and reduced photon numbers by

$$\phi_{\rm int} = 2 N_{\rm ex} \Omega_{ei}^2 t_{\rm int} / \Delta, \quad \bar{n} = \langle N \rangle / 2 N_{\rm ex}, \quad n_T = N_T / 2 N_{\rm ex} \ . \tag{3.5}$$

We get then, from (3.1) and (3.3),

$$\dot{\bar{n}} = - \frac{1}{t_{\rm cav}} \left[\bar{n} - n_T - \int_0^\infty d\phi_{\rm int} \tilde{P}(\phi_{\rm int}) \sin^2(\bar{n} \phi_{\rm int}) \right] , \tag{3.6}$$

where

$$\tilde{P}(\phi_{\rm int}) = \frac{\Delta}{2 N_{\rm ex} \Omega_{ei}^2} P \left[\frac{\Delta \phi_{\rm int}}{2 N_{\rm ex} \Omega_{ei}^2} \right] \tag{3.7}$$

is the atomic interaction time distribution expressed in terms of $\phi_{\rm int}$. Expressed as a function of the speed, this distribution should be Maxwellian. However, this is not the case for $\tilde{P}(\phi_{\rm int})$, since $\phi_{\rm int}$ is proportional to the inverse of the speed. Nevertheless, if this distribution is sufficiently peaked around some average value $\bar{\phi}_{\rm int}$, one can write approximately

$$\tilde{P}(\phi_{\rm int}) \simeq (2\pi\sigma)^{-1/2} \exp[-(\phi_{\rm int} - \bar{\phi}_{\rm int})^2 / 2\sigma^2] \ , \tag{3.8}$$

so that (3.6) can be replaced by an explicit expression,

$$\dot{\bar{n}} = - \frac{1}{t_{\rm cav}} \{ \bar{n} - n_T - \tfrac{1}{2} [1 - e^{-2\sigma^2 \bar{n}^2} \cos(2 \bar{n} \bar{\phi}_{\rm int})] \} \ . \tag{3.9}$$

This equation [or, alternatively, Eq. (3.6)] provides the semiclassical evolution of the number of photons in the cavity. It generalizes the corresponding equation in Ref. 15, since it includes both the effects of the velocity distribution and of thermal photons. The steady-state solutions are obtained from the equation

$$\bar{n} - n_T = \tfrac{1}{2} [1 - e^{-2\sigma^2 \bar{n}^2} \cos(2 \bar{n} \bar{\phi}_{\rm int})] \ . \tag{3.10}$$

This equation states simply that, in steady state, the losses, represented by the term on the left-hand side, equal the gain, expressed on the right-hand side. Both terms are represented on Fig. 2, as a function of $\bar{n}$, and for several values of $\bar{\phi}_{\rm int}$, n_T, and σ. The steady-state solutions are given by the intersections of the straight line with the gain curves. They are stable if the slope of

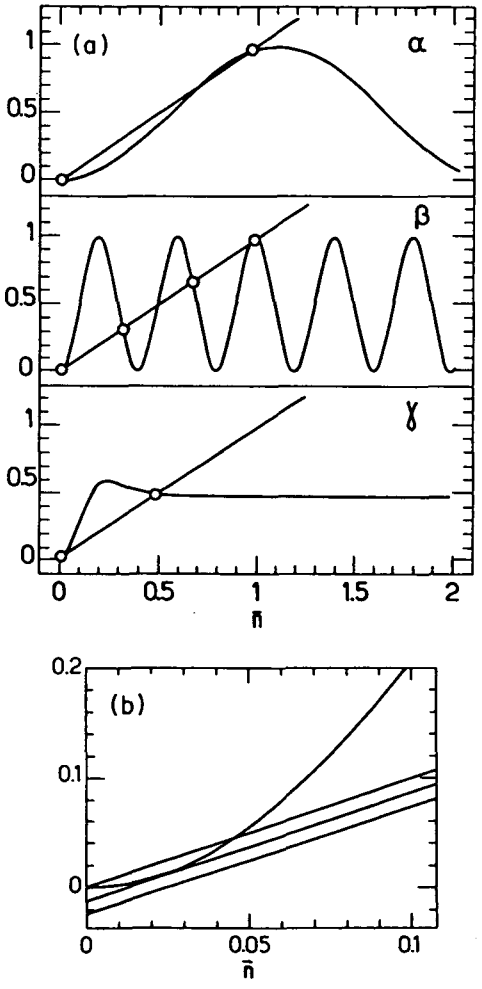


FIG. 2. Semiclassical model of the two-photon maser: loss and gain contributions to $\dot{\bar{n}}$ vs $\bar{n}$, where $\bar{n}$ is the normalized photon number $\langle N \rangle / 2N_{\rm ex}$. The loss term is linear in $\bar{n}$. (a) No thermal photons. The three curves correspond to (α) $\sigma = 0$, $\phi_{\rm int} = 0.9\pi/2$; ($\beta$) $\sigma = 0$, $\phi_{\rm int} = 5\pi/2$; (γ) $\sigma = \pi$, $\phi_{\rm int} = 3\pi/2$. Stable operation points are shown by circles. Note that $\bar{n} = 0$ is always a stable operation point. (α) is just above threshold. Disappearance of multistability as σ increases is apparent in curve (γ). (b) With thermal photons. $\phi_{\rm int} = 3\pi/2$. The three straight lines correspond, from top to bottom, to $n_T = 0$, 0.011, and 0.022, respectively. Triggering field is $n_T = 0.011$.

the absorption curve is larger than the slope of the gain curve at the intersection point. The threshold for oscillation is obtained when the straight line becomes tangent to the gain curve for the first time. For $n_T=0$ and $\sigma=0$, one recovers the solutions studied in Ref. 15, with their characteristic multistable behavior. In this case, the point $\bar{n}=0$ is always stable, even if one is above the threshold for oscillation (which occurs at $\phi_{\rm int}\simeq 0.9\pi/2$), implying that a triggering field is necessary to start the maser action. This feature, which is not present in the one-photon micromaser, was analyzed in detail in Ref. 15.

Changing n_T amounts to translating the straight line in Fig. 2 along a direction parallel to the vertical axis. We see that, as n_T increases, for a fixed value of $\phi_{\rm int}$, the stable points get displaced towards larger values, as expected. In particular, the stable point at the origin moves away from it, until it finally disappears, right after the straight line becomes tangent to the gain curve for the second time [see Fig. 2(b)]. This means that, above this critical value of n_T, the maser starts by itself due to the thermal photons, without need of any coherent triggering field. Alternatively, for a given n_T, there is a critical value of $\bar{\phi}_{\rm int}$ for which the maser starts by itself. These critical values can be calculated by considering the system of equations formed by Eq. (3.10) and the equation obtained by differentiating both sides of (3.10) with respect to $\bar{n}$, which, for $\sigma=0$, is written as

$$\phi_{\rm int}^{-1}=\sin(2\bar{n}\phi_{\rm int})\ . \tag{3.11}$$

In this way, we get, for instance, that the critical value of n_T is approximately 0.011 for $\phi_{\rm int}=3\pi/2$, yielding $N_T\simeq 0.7$ for $N_{\rm ex}=30$ (and $\sigma=0$). Of course, for such a low number of photons the semiclassical analysis may not be valid anymore, and we will see indeed in Sec. IV that it must be substantially modified when quantum effects are taken into account.

As $\sigma/\bar{\phi}_{\rm int}$ increases, the multistability disappears. For large values of this ratio, one cannot really use Eq. (3.8), which was based on the assumption that the velocity distribution is sufficiently sharp. However, going back to Eq. (3.6), we see that if $\tilde{P}(\phi_{\rm int})$ is very broad, one may replace the average over the squared sine by $\frac{1}{2}$, getting therefore as a unique stationary solution $\bar{n}=n_T+\frac{1}{2}$, which corresponds to an average number of photons given by

$$\langle N\rangle=N_{\rm ex}+N_T\ . \tag{3.12}$$

This limit leads to the usual laser theory: The average over speeds replaces the average over lifetimes present in the Scully-Lamb theory.[18] It could also be obtained directly from Eq. (3.9) by setting $\sigma\to\infty$.

The semiclassical picture discussed in this section does not take into account spontaneous emission effects. They will be considered in the following sections, where we will show that they may affect considerably the behavior of the system around $N=0$, specially for low $N_{\rm ex}$.

IV. FOKKER-PLANCK EQUATION: STEADY STATE, MULTISTABILITY, AND APPROACH TO EQUILIBRIUM FOR THE FIELD DIAGONAL MATRIX ELEMENTS

A. Recurrence relation for the steady state

From (2.17), we can see that the diagonal matrix elements in steady state satisfy the recurrence relation,

$$-R\rho_{NN}\left[1-\int_0^\infty t_{\rm int}P(t_{\rm int})\,|\,A(N,t_{\rm int})\,|^2\right]+R\rho_{N-2,N-2}\int_0^\infty dt_{\rm int}P(t_{\rm int})\,|\,B(N,t_{\rm int})\,|^2$$
$$-\frac{\omega}{Q}[N+N_T(2N+1)]\rho_{NN}+\frac{\omega}{Q}(N_T+1)(N+1)\rho_{N+1,N+1}+\frac{\omega}{Q}N_TN\rho_{N-1,N-1}=0\ , \tag{4.1}$$

with the definition

$$\rho_{-1,-1}=\rho_{-2,-2}=0\ . \tag{4.2}$$

As opposed to the one-photon case,[13,14] this recurrence relation does not admit any simple analytic solutions; due to the presence of the term $\rho_{N-2,N-2}$, it cannot be solved by the usual detailed balance argument.[18] We will therefore seek a continuous approximation of the discrete master equation (2.17), which will allow us to find an approximate steady-state solution. This solution will be useful to get physical insight into the behavior of the system. It will be shown to coincide very closely with the numerical solution of (4.1) and (4.2), so long as $N\gg 1$. Furthermore, the same approximation method, when applied to the equation for the off-diagonal matrix elements, will be useful to study the phase-diffusion properties of the field. However, the dynamical evolution of the system will be obtained numerically directly from (2.17). The master equation will also be required to study the behavior of the steady state close to $N=0$. This will be done in Sec. IV E, directly from (4.1) and (4.2).

B. Derivation of the Fokker-Planck equation

Let us define

$$n=N/2N_{\rm ex},\quad \delta=1/2N_{\rm ex}\ . \tag{4.3}$$

Let

$$\tilde{A}(n,\phi_{\rm int})=A(N,t_{\rm int})\ , \tag{4.4}$$

with N and $t_{\rm int}$ expressed in terms of n and $\phi_{\rm int}$ by (4.3)

and (3.5), so that, from (2.11),

$$|\tilde{A}(n,\phi_{\rm int})|^2=1-\frac{4(n+\delta)(n+2\delta)}{(2n+3\delta)^2}\times\sin^2\left[\frac{2n+3\delta}{2}\phi_{\rm int}\right] . \tag{4.5}$$

We also define a dimensionless time

$$\tau=Rt \tag{4.6}$$

and replace the discrete distribution $\rho_{NN}(t)$ by the continuous function

$$\rho(n,\tau)=\rho_{NN}(t) . \tag{4.7}$$

We get then from (2.17)

$$\frac{\partial}{\partial\tau}\rho(n,\tau)=-\rho(n,\tau)\left[1-\int_0^\infty d\phi_{\rm int}\tilde{P}(\phi_{\rm int})|\tilde{A}(n,\phi_{\rm int})|^2\right]+\rho(n-2\delta,\tau)\left[1-\int_0^\infty d\phi_{\rm int}\tilde{P}(\phi_{\rm int})|\tilde{A}(n-2\delta,\phi_{\rm int})|^2\right]$$
$$-2[n+N_T(2n+\delta)]\rho(n,\tau)+2(N_T+1)(n+\delta)\rho(n+\delta,\tau)+2N_T n\rho(n-\delta,\tau) . \tag{4.8}$$

We now expand this equation into powers of δ, keeping terms up to $O(\delta^2)$. This approximation is valid as long as $n\gg\delta$, that is, $N\gg1$, and $\delta\ll1$, that is, $2N_{\rm ex}\gg1$. We get then

$$\frac{\partial}{\partial\tau}\rho(n,\tau)=-\delta\frac{\partial}{\partial n}[a_1(n)\rho(n,\tau)]+\frac{\delta^2}{2}\frac{\partial^2}{\partial n^2}[a_2(n)\rho(n,\tau)]+O(\delta^3) , \tag{4.9}$$

where

$$a_1(n)=2\left[\int_0^\infty d\phi_{\rm int}\tilde{P}(\phi_{\rm int})\left[\sin^2(n\phi_{\rm int})+\frac{3\delta\phi_{\rm int}}{2}\sin(2n\phi_{\rm int})\right]-n+n_T\right] , \tag{4.10}$$

$$a_2(n)=4\int_0^\infty d\phi_{\rm int}\tilde{P}(\phi_{\rm int})\sin^2(n\phi_{\rm int})+2n(1+2N_T) , \tag{4.11}$$

and, according to (3.5) and (4.3), $n_T=\delta N_T$.

This is an equation of the Fokker-Planck type. It is easy to show that the same procedure, applied to the one-photon micromaser, leads precisely, except for the terms of $O(\delta)$ in (4.10), to the Fokker-Planck equation obtained in Ref. 13 by another method, which is valid in principle only for small times. The present approach is explicitly valid for all times. Besides, it allows, as we will show in Sec. V, the analysis of the behavior of the off-diagonal elements of the density matrix and therefore of the phase diffusion properties of the micromaser.

The first term on the right-hand side of (4.9) is the drift term; the second-order contribution is the diffusion term. One should notice that $a_2(n)\geq0$, yielding a positive-definite diffusion coefficient, as it should be. It is easy to show from (4.9) that

$$\frac{d}{d\tau}\langle n\rangle=\int_0^\infty n\frac{\partial\rho(n,\tau)}{\partial\tau}dn=\delta\langle a_1(n)\rangle , \tag{4.12}$$

which is just the semiclassical evolution equation (3.6), with the approximation $\langle a_1(n)\rangle=a_1(\langle n\rangle)$ and the omission of corrections of order δ. It is tempting to associate with $a_1(n)$ a potential defined by

$$U(n)=-\delta\int_0^n a_1(n')dn' , \tag{4.13}$$

which would govern not only the semiclassical evolution [Eq. (4.12) being thus analogous to that of a forced overdamped oscillator] but also the probability distribution. We will see, however, in the following that this last statement is not true, due to the n dependence of the diffusion coefficient.

C. Steady state

The steady-state solution of (4.9) is easily obtained:

$$\rho^S(n)=\frac{C}{a_2(n)}\exp\left[\frac{2}{\delta}\int_0^n\frac{a_1(n')}{a_2(n')}dn'\right] , \tag{4.14}$$

where C is a normalization constant. This expression diverges when $n\to0$, which is a consequence of the nonvalidity of (4.9) in this limit. It has the form of a Boltzmann distribution,

$$\rho^S(n)=\exp[-2V_F(n)/\delta] , \tag{4.15}$$

with an effective potential,

$$V_F(n)=-\int_0^n\frac{a_1(n')}{a_2(n')}dn'+\frac{\delta}{2}\ln a_2(n)-\frac{\delta}{2}\ln C . \tag{4.16}$$

This potential completely determines the behavior of $\rho^S(n)$, which is peaked around the absolute minimum of $V_F(n)$. If differs, however, from the semiclassical potential (4.13), precisely because of the n dependence of the diffusion coefficient. Since $\delta\ll1$, the second term on the right-hand side of (4.16) will give a small contribution, the same being valid for the δ-dependent term in $a_1(n)$. Thus, the extrema of $V_F(n)$ will practically coincide with the zeros of $a_1(n)$, which correspond to the steady-state operating points in the semiclassical model [unstable ones corresponding to the maxima of $V_F(n)$, stable ones to the minima].

We display in Fig. 3 the effective potential $V_F(n)$, for several values of $\phi_{\rm int}$, when σ and n_T are set equal to zero, and $N_{\rm ex}=30$. In the same figure, we show the potential obtained, through Eq. (4.15), from the numerical

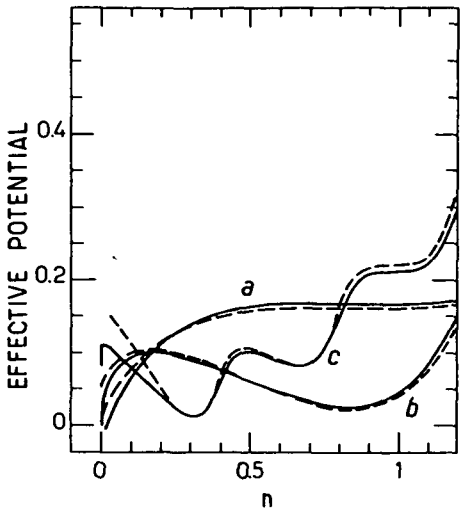


FIG. 3. Effective potential $V_F(n)$ and $V_M(n)$ for a, $\phi_{\rm int}=0.9\pi/2$; b, $\phi_{\rm int}=1.5\pi/2$; c, $\phi_{\rm int}=5\pi/2$. The solid curve corresponds to the potential V_F obtained from the Fokker-Planck equation; the dashed curve to V_M, obtained from the master equation. $\sigma=0$ and $n_T=0$.

solution of (4.1) and (4.2). We call this potential $V_M(n)$. The coincidence is remarkable, except for very small n, as expected. In Fig. 4, we show the potential $V_F(n)$ for $\bar{\phi}_{\rm int}=5\pi/2$ and several values of σ, still for $n_T=0$. The multistable nature of the solution disappears as σ increases. The limit $\sigma\to\infty$ is easily obtained from (4.10), (4.11), and (4.14). We get

$$\rho^S(n)\simeq C'(1+nl)^{(2+l)/\delta l^2}\exp(-2n/\delta l)\ , \tag{4.17}$$

where $C'=C/2$ and

$$l=1+2N_T\ . \tag{4.18}$$

This distribution has only one maximum, at $n\simeq\frac{1}{2}$, corresponding to

$$N\simeq N_{\rm ex}\ . \tag{4.19}$$

The disagreement with (3.12) is due to the N_T dependence of the diffusion coefficient, leading to an uncertainty in the number of photons which is bigger than the difference between (3.12) and (4.19).

For $l=1(N_T=0)$, one finds for the photon-number distribution,

$$P(N)\simeq\left[1+\frac{N}{2N_{\rm ex}}\right]^{6N_{\rm ex}}\exp(-2N)\ . \tag{4.20}$$

The semiclassical model threshold corresponds to the $\phi_{\rm int}$ for which the potential develops for the first time an extra minimum, besides the one around the origin. For $\sigma=0$ and $n_T=0$, we know already that the threshold is obtained for $\phi_{\rm int}\simeq0.9\pi/2$, and we see indeed that for this value of $\phi_{\rm int}$ there appears a minimum of $V_F(n)$ [and also of $V_M(n)$] around $n=1$. However, in this situation, $\rho^S(n)$ is still maximal for $n=0$, and the steady-state mean photon number is close to zero, as can be explicitly seen in Fig. 5, which exhibits $\langle N\rangle$ as a function of $\phi_{\rm int}$ for the steady state. The threshold condition is thus not the same as in the semiclassical model; a minimum of $V_F(n)$ for $n\neq0$ must exist, but its value must be lower than the value of $n=0$ (that happens for $\phi_{\rm int}\geq1.4\pi/2$; the corresponding threshold value of $\langle N\rangle$ is ~50, for $N_{\rm ex}=30$).

As $\phi_{\rm int}\to\infty$, the average photon number goes to a limit which is approximately given by (4.19). This is a consequence of the fact that, as $\phi_{\rm int}\to\infty$, the trigonometric functions in (4.10) and (4.11) oscillate very fast as n varies, and therefore can be replaced by their averages in the calculation of $\langle N\rangle$, which is precisely the effect produced by the limit $\sigma\to\infty$. It is not surprising, therefore, that the two limits yield the same value for $\langle N\rangle$.

In Fig. 6, we display the potential $V_M(n)$, obtained directly from (4.1) and (4.2), for $\sigma=0$, $\phi_{\rm int}=3\pi/2$, and different values of N_T (again $N_{\rm ex}=30$). Contrary to the semiclassical analysis, $V_M(n)$ has a minimum at $n=0$, independently of the value of N_T. This will be discussed in Sec. IV E. As N_T increases, the potential well around $N=30$ gets wider and flatter, because the diffusion coefficient $a_2(n)$ increases with N_T.

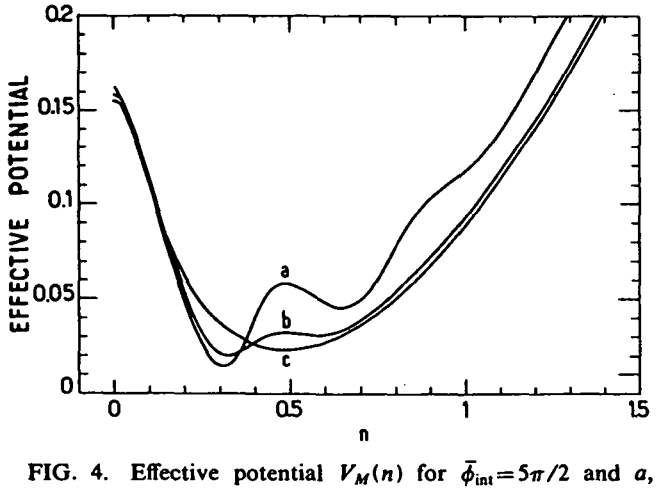


FIG. 4. Effective potential $V_M(n)$ for $\bar{\phi}_{\rm int}=5\pi/2$ and a, $\sigma=\pi/4$; b, $\sigma=\pi/2$; c, $\sigma=3\pi/2$.

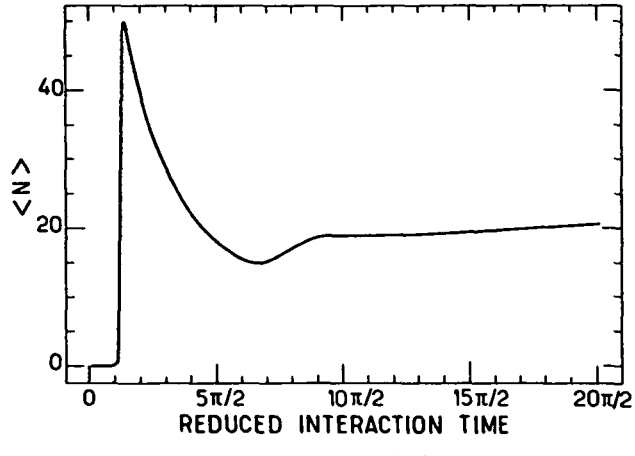


FIG. 5. Average photon number $\langle N\rangle$ in steady state, as a function of the reduced interaction time $\phi_{\rm int}$ ($\sigma=0$, $N_T=0$, $N_{\rm ex}=30$).

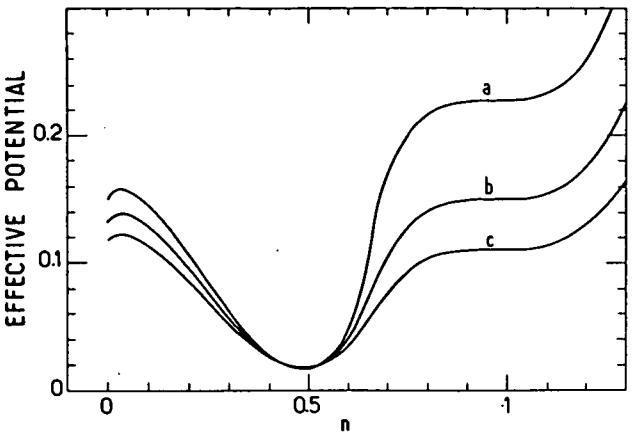


FIG. 6. Effective potential $V_M(n)$ for $\sigma=0$, $\phi_{\text{int}}=3\pi/2$, $N_{\text{ex}}=30$, and a, $N_T=0$; b, $N_T=0.3$; c, $N_T=0.7$.

Another distinction between the semiclassical analysis and the present treatment is that, in the former case, the steady-state solution depends on the initial condition (for instance on the presence of a triggering field). This is certainly not the case here; $\rho^S(n)$ is the same no matter what the initial condition is. The connection between these two results will be clarified in the following.

D. Local and global approaches to equilibrium

The Fokker-Planck equation (4.9) allows a simple physical picture of the time-dependent behavior of the statistics of the field.

Let us consider the time evolution of the system when $\rho(n)$ is initially peaked around an arbitrary n_0 value. The approach to equilibrium will proceed in general in two steps, corresponding to two quite different time scales.[19] Because of the drag term $a_1(n)$ in (4.9), the mean photon number will reach in a short time a value close to the nearest local minimum of $V_F(n)$ (as we will show below, the time scale of this process turns out to be t_{cav}). Correspondingly, the initial peak will be displaced and, at the same time, its shape will change, turning into a "local equilibrium" distribution, often sub-Poissonian. Generally, this minimum is not the lowest one, and the state reached is only metastable. Because of the fluctuations [associated with the term $a_2(n)$], $\rho(n)$ will escape from this potential well and reach a more stable one. The corresponding passage times are usually much larger than t_{cav}, and become infinite when $N_{\text{ex}}\to\infty$; we recover, then, the semiclassical results. The solution will, in this situation, depend on the initial condition even for very large times since passage to other wells just does not occur, in this limiting case.

The local equilibrium behavior is obtained by setting, in (4.9), $a_2(n)$ equal to its value at the closest local minimum n_L of $V_F(n)$, and by expanding $a_1(n)$ around n_L, up to first order $n-n_L$. We get then for $\rho(n)$ the following equation:

$$\frac{\partial}{\partial\tau}\rho(n,\tau)=-\delta\frac{\partial}{\partial n}[a_1'(n_L)(n-n_L)\rho(n,\tau)] + \frac{\delta^2}{2}a_2(n_L)\frac{\partial^2}{\partial n^2}\rho(n,\tau)\,. \tag{4.21}$$

This equation is associated with a Ornstein-Uhlenbeck process.[19] Its solution, subject to the initial condition $\rho(n,\tau=0)=\delta(n-n_0)$, can be explicitly found and predicts an approach to equilibrium with a time constant $[\delta|a_1'(n_L)|]^{-1}$. Since $|a_1'(n_L)|$ is of order unity and in (4.21) time is measured in units of t_{at}, this means that the time constant for the approach to local equilibrium is of the order of $N_{\text{ex}}t_{\text{at}}=t_{\text{cav}}$. Of course, Eq. (4.21) is valid only if this local equilibrium time is much smaller than the passage time, since writing (4.21) is equivalent to assuming that initially $\rho(n)$ "sees" but the local

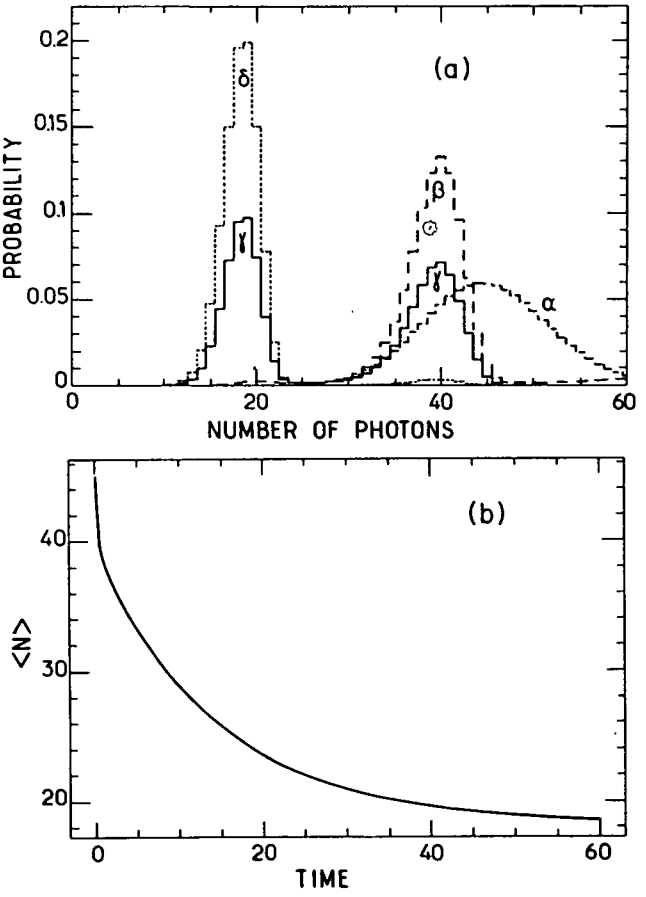


FIG. 7. Dynamics of the photon distribution for $\phi_{\text{int}}=5\pi/2$, $\sigma=0$, $N_T=0$, $N_{\text{ex}}=30$. The potential $V_M(n)$ corresponds to curve c in Fig. 3. The initial distribution corresponds to a coherent state with $\langle N\rangle=45$. (a) Evolution of the photon-number distribution: (α) $t=0$; (β) $t=0.5t_{\text{cav}}$, (γ) $t=10t_{\text{cav}}$; (δ) $t=60t_{\text{cav}}$. Notice the very fast change from the initial coherent distribution to a sub-Poissonian one centered around the local minimum of $V_M(n)$ at $n=\frac{2}{3}$, corresponding to $N=40$. (b) Evolution of $\langle N\rangle$. Time is expressed in units of t_{cav}. Note the change in slope around time $t\sim t_{\text{cav}}$, corresponding to the transition from the fast drift to the local minimum to the slow passage to the absolute minimum.

minimum of $V_F(n)$.

On the other hand, the passage time, which governs the leaking of probability from one potential well into its neighbor, is given by Kramers's formula, which yields in the present case, in real time units[13,19]

$$T_p \simeq 2\pi t_{\rm cav}\left[\,|a_1'(n_L)|\,a_1'(n_1)\frac{a_2(n_1)}{a_2(n_L)}\,\right]^{-1/2} \times\exp\left[\frac{2}{\delta}[V_F(n_1)-V_F(n_L)]\right], \tag{4.22}$$

where n_1 is the value of n corresponding to the maximum of the potential between n_L and its neighbor. In other words, $V_F(n_1)-V_F(n_L)$ is the height of the potential barrier which separates the well around n_L from its neighbor.

From Eq. (4.22) and Fig. 3, we see that T_p is of the order of $t_{\rm cav}\exp(\alpha N_{\rm ex})$, where α is a constant of order 0.1. A similar analysis was applied in Ref. 13 to the one-photon micromaser, where the same kind of result is obtained. In particular, it is clear that when $N_{\rm ex}\to\infty$, so does the passage time, and the semiclassical limit is attained.

In Fig. 7(a), we display the time-dependent behavior of $\rho(n,\tau)$, starting from an initial coherent state,[20] for $\phi_{\rm int}=5\pi/2$ and $N_{\rm ex}=30$ (σ and n_T are set equal to zero). In this case, if one starts around the rightmost well of $V_F(n)$, depicted in Fig. 3(c), the passage time will be of the order of $20t_{\rm cav}$. The local equilibrium distribution corresponds to the curve β in Fig. 7(a), which clearly exhibits a sub-Poissonian statistics. The evolution of the average number of photons is shown in Fig. 7(b). The exponential dependence of the passage time on $N_{\rm ex}$ is verified in Fig. 8 [the δ dependence of $V_F(n)$ is negligible for the values of $N_{\rm ex}$ considered in this figure]. All these graphs are obtained by direct numerical integration of the master equation (2.16), with $n_T=0$.

E. Low-N behavior and spontaneous self-starting

The same mechanism explains why the $N=0$ solution can be quantum mechanically unstable. Even though expression (4.22) cannot be applied in this case, this can be explicitly verified again by direct numerical integration of (2.16). In Fig. 9, we plot the average number of photons as a function of time, for the case in which no triggering field is initially present in the cavity. For $\phi_{\rm int}=3\pi/2$ and $N_{\rm ex}=30$, the passage time is actually very small (of the order of a few $t_{\rm cav}$) already for $\sigma=0$ and $n_T=0$. As σ and n_T increase, this time becomes even smaller (Fig. 9 illustrates the dependence with n_T). This implies that, at least for not very large values of $N_{\rm ex}$, a triggering field is actually not necessary in order to start the maser oscillation.

The behavior of the starting time as a function of $\phi_{\rm int}$ is shown in Fig. 10(a). We notice that, for $\phi_{\rm int}\simeq 5\pi/2$, the starting time suddenly decreases, becoming of the order of $t_{\rm cav}$. This happens because, for such high pumping rates, $n=0$ is not even a minimum of $V_M(n)$. This can be seen explicitly from (4.1) and (4.2). Setting $N=0$ in (4.1), one gets

$$\rho_{11}=\frac{N_{\rm ex}}{N_T+1}\rho_{00}\left[1-\int_0^\infty dt_{\rm int}P(t_{\rm int})\,|\,A(0,t_{\rm int})\,|^2+\frac{N_T}{N_{\rm ex}}\right]. \tag{4.23}$$

The mininum of the effective potential $V_M(n)$ (or, equivalently, the maximum of the probability distribution) at $N=0$ will disappear when $\rho_{11}>\rho_{00}$. Imposing this condition on (4.23), we find that this happens when

$$R\left[1-\int_0^\infty dt_{\rm int}P(t_{\rm int})\,|\,A(0,t_{\rm int})\,|^2\right]>1/t_{\rm cav}\,. \tag{4.24}$$

This relation has a simple physical interpretation. The left-hand side is the rate of production of photons by spontaneous emission, while the right-hand side is the cavity loss rate. Equation (4.24) simply states that $\rho_{11}>\rho_{00}$ if the spontaneous emission rate at $N=0$ is larger than the loss rate. In this case, the potential barrier around $N=0$ disappears and this point becomes unstable (of course, before this situation is attained, the point $N=0$ is already metastable).

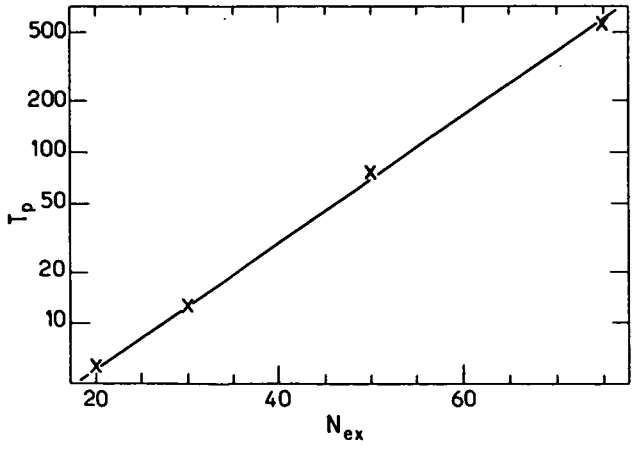


FIG. 8. Passage times as a function of $N_{\rm ex}$. Conditions are the same as in Fig. 7. T_p expressed in units of $t_{\rm cav}$.

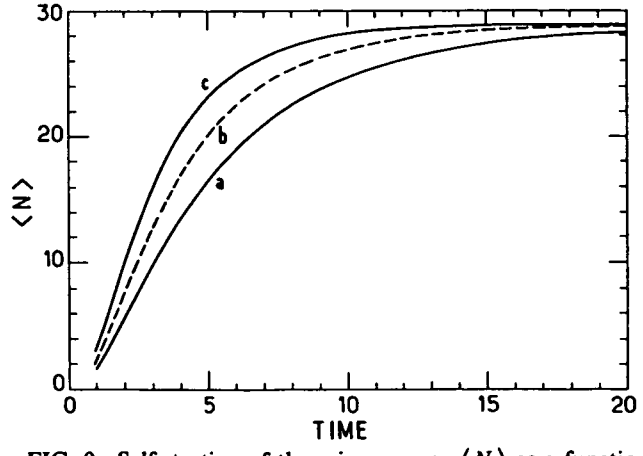


FIG. 9. Self-starting of the micromaser: $\langle N\rangle$ as a function of time (in units of $t_{\rm cav}$), when the cavity is initially in thermal equilibrium with *a*, $N_T=0$; *b*, $N_T=0.3$; *c*, $N_T=0.7$. ($\phi_{\rm int}=3\pi/2$ and $N_{\rm ex}=30$ for the three curves.)

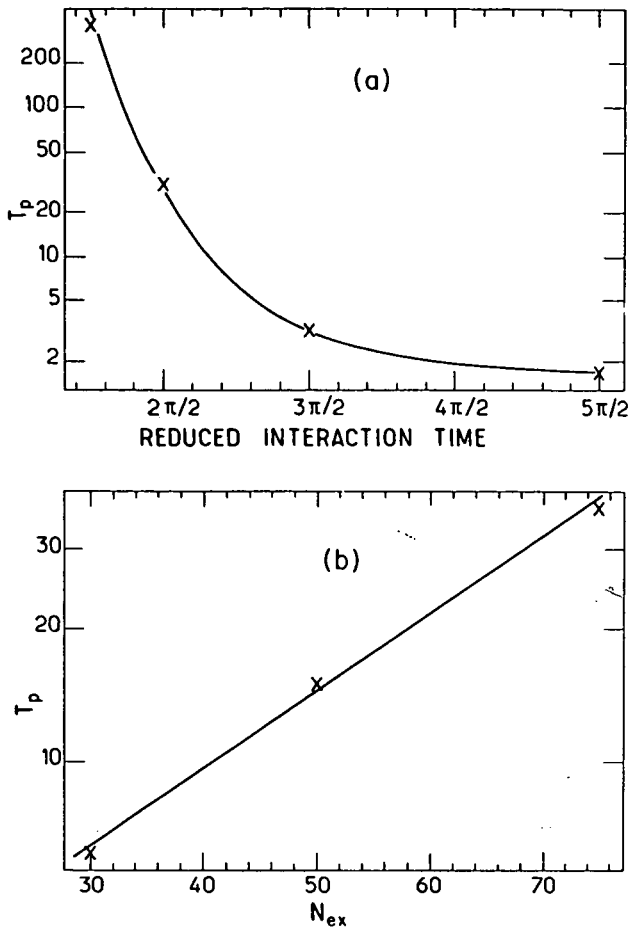


FIG. 10. Self-starting time as a function of (a) $\bar{\phi}_{int}$ for $N_{ex}=30$; (b) N_{ex} for $\bar{\phi}_{int}=3\pi/2$. We take $\sigma=0$ and $N_T=0$. T_p expressed in units of t_{cav}.

Taking (2.11) and (3.5) into account, we can write (4.24) in the form

$$(8N_{ex}/9)\int_0^\infty d\phi_{int}\tilde{P}(\phi_{int})\sin^2(3\phi_{int}/4N_{ex})>1\ . \quad (4.25)$$

For $\bar{\phi}_{int}/4N_{ex}\ll 1$, and for $\sigma\leq\bar{\phi}_{int}$, we can write approximately, from (4.25), that the condition for the potential barrier around $N=0$ to disappear is

$$\bar{\phi}_{int}>(2N_{ex}-\sigma^2)^{1/2}\ , \quad (4.26)$$

where we have used that $\bar{\phi}^2=(\bar{\phi})^2+\sigma^2$.

For $\sigma=0$ and $N_{ex}=30$, we find that the critical value of $\bar{\phi}_{int}$ is $4.9\pi/2$, consistent with the behavior shown in Fig. 10(a). The threshold lowers as σ increases, a consequence of the fact that the speed fluctuations add up to the spontaneous emission fluctuations in rendering the $N=0$ point unstable. In Fig. 10(b), we verify that, as long as $\bar{\phi}_{int}\leq 4.9\pi/2$, the escape time from $N=0$ grows exponentially with N_{ex}, thus extending to this region a result valid originally only for $N\gg 1$.

The above discussion shows that the condition for $N=0$ to be a local maximum of the probability distribution does not depend on the number of thermal photons. This is contrary to the semiclassical analysis, which predicts that this maximum should get displaced and should eventually disappear as n_T increases (cf. discussion in Sec. III). This discrepancy is due to the increase of the diffusion coefficient with N_T, smoothing out the potential around $N=0$. Furthermore, as N_T increases, the potential wells get flattened, and the passage time out of $N=0$ approaches indeed a value of the order of t_{cav}.

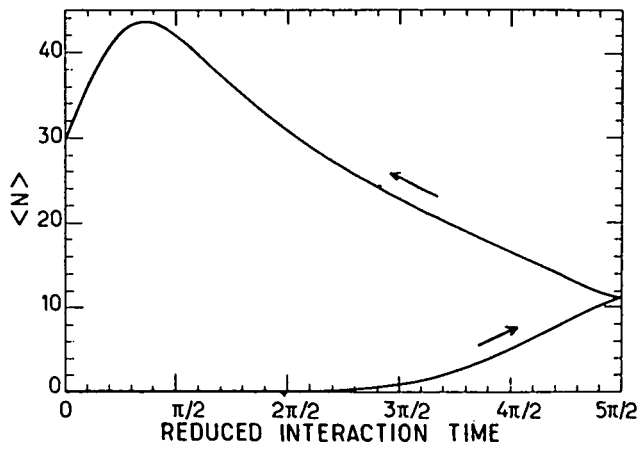


FIG. 11. Hysteresis cycle starting from $N=0$ for $N_{ex}=30$: $\langle N\rangle$ as a function of $\bar{\phi}_{int}$ when $\bar{\phi}_{int}$ changes linearly in time from 0 to $5\pi/2$ and then back to zero, in a time equal to $10t_{cav}$.

The above considerations allow us to predict a hysteresis cycle around $N=0$. Indeed, as $\bar{\phi}_{int}$ gets larger than the critical value (4.25), the system starts oscillating by itself in a time of the order of t_{cav}, going to the first minimum of the effective potential $V_M(n)$. Assume now that $\bar{\phi}_{int}$ is made to decrease past that critical value, in a scanning time much smaller than the passage time but much longer than t_{cav}. The average number of photons adiabatically follows the minimum of the evolving potential well, until this well finally disappears, at $\bar{\phi}_{int}\simeq 0.9\pi/2$, when $\langle N\rangle$ again goes to zero. The system stops oscillating therefore at a value of $\bar{\phi}_{int}$ smaller than the one for which it starts oscillating; we have thus a hysteresis cycle. We have verified this numerically, by direct integration of Eq. (2.16) with $N_T=0$, as shown in Fig. 11. The cycle duration is $10t_{cav}$. Note that in this figure $\langle N\rangle$ does not go back to zero. This is due to the fact that the end of the cycle, when the system is again below threshold, is swept in a time of the order of t_{cav}, so that the cavity field does not have time to decay completely.

Let us note that the metastability of the $N=0$ solution and the existence of hysteresis cycles in two-photon laser operation were already discussed in Ref. 9, which analyzed the evolution of a two-photon laser with thermal noise as a phase-transition phenomenon. This work was dealing with macroscopic lasers in which fluctuations alone are usually unable to start the oscillation if there is a potential well at $N=0$. It thus did not estimate the untriggered laser start-up time and focused instead on the behavior of triggered two-photon lasers. The theory in Ref. 9 was based on a Fokker-Planck equation different from the one presented here, which involved the field amplitude and not the photon-number distribution.

V. PHASE DIFFUSION AND SELF-INDUCED FREQUENCY PULLING

A. Fokker-Planck equation for nondiagonal elements

We apply now the method of Sec. IV to the off-diagonal elements of the density matrix. The elements $\rho_{N,N+1}$ determine the ensemble average of the electric field, according to

$$\langle E(t)\rangle = \mathcal{E}_0 \sum_N \rho_{N,N+1}(t)\sqrt{N+1}\exp(-i\omega t)+\text{c.c.} , \quad (5.1)$$

and therefore also the power spectrum and the maser linewidth. We analyze in this section the time-dependent behavior of $\rho_{N,N+1}$. In the Appendix C, we consider $\rho_{N,N+2}(t)$, which is important to discuss the squeezing properties of the field.

We set thus in (2.17) $M=N+1$, and introduce the normalized variable n, as before [Eq. (4.3)]. Setting

$$g(n,\tau)=\rho_{N,N+1}(t) , \quad (5.2)$$

where $\tau=Rt$, we get

$$\frac{d}{d\tau}g(n,\tau)=-g(n,\tau)\left[1-\int_0^\infty d\phi_{\text{int}}\tilde{P}(\phi_{\text{int}})\tilde{A}(n,\phi_{\text{int}})\tilde{A}^*(n+\delta,\phi_{\text{int}})\right]$$
$$+g(n-2\delta,\tau)\int_0^\infty d\phi_{\text{int}}\tilde{P}(\phi_{\text{int}})\tilde{B}(n,\phi_{\text{int}})\tilde{B}^*(n+\delta,\phi_{\text{int}})-[2n+\delta+4N_T(n+\delta)]g(n,\tau)$$
$$+2(N_T+1)\sqrt{(n+\delta)(n+2\delta)}g(n+\delta,\tau)+2N_T\sqrt{n(n+\delta)}g(n-\delta,\tau) . \quad (5.3)$$

Developing this equation in powers of δ, and keeping terms up to $O(\delta^2)$, we get

$$\frac{d}{d\tau}g(n,\tau)=-\mu(n)g(n,\tau)-\delta\frac{\partial}{\partial n}[b_1(n)g(n,\tau)]+\frac{\delta^2}{2}\frac{\partial^2}{\partial n^2}[a_2(n)g(n,\tau)]+O(\delta^2) , \quad (5.4)$$

where $a_2(n)$ is given by (4.11), and

$$\mu(n)=\delta^2\left[\int_0^\infty d\phi_{\text{int}}\tilde{P}(\phi_{\text{int}})\phi_{\text{int}}^2+\frac{1+2N_T}{4n}\right]+i\delta\left[\bar{\phi}_{\text{int}}-\frac{\delta}{2n}\int_0^\infty d\phi_{\text{int}}\tilde{P}(\phi_{\text{int}})\phi_{\text{int}}\left[1-\frac{\sin(2n\phi_{\text{int}})}{2n\phi_{\text{int}}}\right]\right] , \quad (5.5)$$

$$b_1(n)=2\left[\int_0^\infty d\phi_{\text{int}}\tilde{P}(\phi_{\text{int}})[(1-i\delta\phi_{\text{int}})\sin^2(n\phi_{\text{int}})+2\delta\phi_{\text{int}}\sin(2n\phi_{\text{int}})]-n+n_T-\delta/2\right] . \quad (5.6)$$

One should notice that $b_1(n)$ differs from $a_1(n)$, given by (4.10), by terms of order δ. Equation (5.4) differs from Eq. (4.9) also because of the presence of a term proportional to $g(n)$, in (5.4). We will show in the following that this term is very important, being associated with the decay of the ensemble average of the electric field and with the maser linewidth.

B. Phase diffusion and frequency pulling

Let $\bar{g}(n,\tau)$ be the solution of the equation

$$\frac{d}{d\tau}\bar{g}(n,\tau)=-\delta\frac{\partial}{\partial n}[b_1(n)\bar{g}(n,\tau)]+\frac{\delta^2}{2}\frac{\partial^2}{\partial n^2}[a_2(n)\bar{g}(n,\tau)] . \quad (5.7)$$

This is a Fokker-Planck equation quite close to (4.9). Its stationary solution should be very close to $\rho^S(n)$. Furthermore, we will also have here two time scales, corresponding to the local and the global approach to equilibrium. If the initial distribution is close to one of the minima of the corresponding potential [which should be very close to the minima of $V_F(n)$], situated say at $n=n_L$, then, for times much smaller than the passage time, one can approximate n by n_L in $\mu(n)$. In this case, an approximate solution of (5.3) would be

$$g(n,\tau)\simeq\exp[-\mu(n_L)\tau]\bar{g}(n,\tau) . \quad (5.8)$$

For $t\gtrsim t_{\text{cav}}$, $\bar{g}(n,\tau)$ coincides with the local equilibrium distribution $g_L(n)$, and therefore $\mu(n_L)$ plays the role of a phase-diffusion constant, its real part being associated, as we can see from (5.1), to the exponential decay of the field. Of course, in order for this treatment to be consistent, it is necessary that the corresponding decay time be much larger than t_{cav}, while at the same time much smaller than the passage time. This will be shown below to be indeed the case, for sufficiently large N_{ex}.

Contrary to what happens in usual laser theory,[18] μ has an imaginary part, which corresponds to a frequency shift of the radiation in the cavity at resonance with the atomic transition. In real time units, one gets for the decay constant,

$$K=\frac{1}{4N_{\text{ex}}t_{\text{cav}}}\left[(\bar{\phi}_{\text{int}})^2+\sigma^2+\frac{1+2N_T}{4n_L}\right] , \quad (5.9)$$

while the frequency shift is given by

$$\Delta\omega\simeq\bar{\phi}_{\text{int}}/2t_{\text{cav}}=\Omega_{ei}^2N_{\text{ex}}\bar{t}_{\text{int}}/\Delta t_{\text{cav}} . \quad (5.10)$$

We can see therefore that the decay time of the off-diagonal matrix elements $\rho_{N,N+1}$ is of the order of $4N_{\text{ex}}t_{\text{cav}}$ (for $\bar{\phi}_{\text{int}}\sim n_L\sim 1$). For sufficiently large N_{ex},

this time will be indeed much larger than the local equilibrium time constant t_{cav} and much smaller than the global equilibrium time constant, which grows exponentially with N_{ex}. This means that $\rho_{N,N+1}(t)$ goes to zero before the long-time steady-state is attained, thus justifying the approximation $n \simeq n_L$ in $\mu(n)$. The associated linewidth, of the order of $(4N_{ex}t_{cav})^{-1}$, may be much smaller than the linewidth of the empty cavity.

In (5.9), the term

$$(1+2N_T)/16N_{ex}n_L t_{cav}=(1+2N_T)/8N_L t_{cav}$$

coincides precisely with the contribution from dissipation to the phase-diffusion rate in one-photon laser models.[18] The remaining contribution to (5.9) comes from the pumping, and it is also present, although not in the same form, in the usual laser models.[18]

The frequency shift, on the other hand, is quite characteristic of the two-photon micromaser, and can be interpreted as a self-induced frequency pulling, which occurs in spite of the fact that the atoms are initially in resonance with the cavity. This frequency pulling originates from a quadratic ac Stark shift between states $|e\rangle$ and $|f\rangle$ induced by the field in the cavity, via the intermediate state $|i\rangle$. According to Refs. 15 and 17, this shift is given by

$$\frac{\Omega_{ei}^2(N+2)}{\Delta}-\frac{\Omega_{ei}^2(N+1)}{\Delta}=\frac{\Omega_{ei}^2}{\Delta}\ , \tag{5.11}$$

so that the atom, after entering the cavity, is no longer in resonance with the field. As in the frequency-pulling effect,[18] the refractive index of the atomic medium produces then a shift in the frequency of the field inside the cavity. For one-photon masers, this Stark shift is much smaller (in fact, it is absent in two-level atom models), so frequency pulling is usually negligible when the atoms are resonant with the cavity. In the two-photon maser, the shift $\Delta\omega$ can be much larger than the cavity width $1/t_{cav}$, when $\bar{\phi}_{int} \gg 1$ [see Eq. (5.10)].

We display in Fig. 12 the time-dependent behavior of $\mathrm{Re}[\rho_{N,N-1}(t)]$, for $N=29$ as calculated numerically from Eq. (2.16), with n_T set equal to zero for simplicity. We take $\phi_{int}=3\pi/2$, and assume that the initial state is a coherent one, with $\langle N\rangle=29$. Both the decay constant and the frequency of the oscillations agree precisely with the values given by (5.9) and (5.10). One should notice that Eq. (2.16) yields $\rho(t)$ in interaction representation, so that these oscillations actually represent the beating between the field and the cavity frequencies [cf. Eq. (5.1)].

We show in Appendix B that the δ-expansion method offers a natural way to find the phase-diffusion constant in the usual laser theory, and we apply it also to find the phase-diffusion constant in the one-photon micromaser.

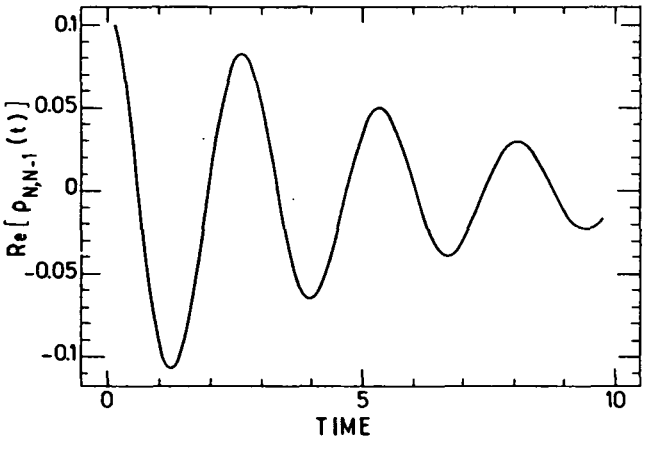


FIG. 12. Time-dependent behavior of $\mathrm{Re}[\rho_{N,N-1}(t)]$ for $N=29$. The initial state is a coherent one with $\langle N\rangle=29$, which corresponds to the absolute minimum of V_M ($\phi_{int}=3\pi/2$). The decay time coincides with the phase-diffusion time found in the text, while the oscillation frequency is given by the self-induced frequency shift. $N_{ex}=30$, $\sigma=0$, $n_T=0$. Time expressed in units of t_{cav}.

VI. SUB-POISSONIAN STATISTICS

It has been shown that the field inside the cavity in a one-photon micromaser presents, under certain conditions, a sub-Poissonian statistics.[13] On the other hand, it has been pointed out that the field emitted by two-photon lasers might present interesting statistical properties, and that these devices could be used to generate "squeezed" states of light.[5,6] One should therefore expect to find these properties for a two-photon micromaser.

The normalized variance of the field inside the cavity,

$$V=(\langle N^2\rangle-\langle N\rangle^2)^{1/2}/\langle N\rangle^{1/2}\ ,$$

as a function of ϕ_{int}, is shown in Fig. 13. Again, this variance was numerically calculated from the steady-state distributions resulting from (4.1) and (4.2). The field is seen to exhibit a sub-Poissonian statistics from $\phi_{int}\simeq 1.5\pi/2$ to $\phi_{int}\simeq 6.5\pi/2$ (we take $\sigma=0$ and $N_T=0$). As $\phi_{int}\to\infty$, the variance tends to a limiting value, which coincides with the variance of the limiting distribution (4.20).

The large peak in Fig. 13 corresponds to the situation

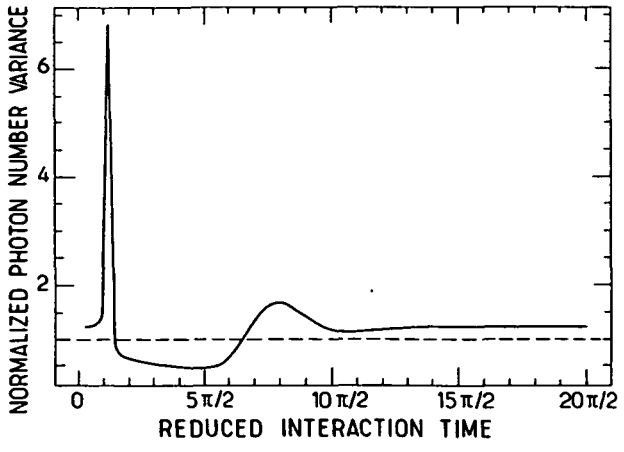


FIG. 13. Evidence of sub-Poissonian statistics: normalized photon-number variance of the field inside the cavity as a function of ϕ_{int} ($\sigma=0$, $n_T=0$, $N_{ex}=30$).

depicted in Fig. 3(b), in which the minimum of the potential outside the origin has about the same height as the one at the origin. This implies that the photon-number distribution displays two peaks of approximately equal height, thus yielding a large variance. A similar argument holds for the peak around $\phi_{\rm int}=8\pi/2$, in Fig. 13; the two minima displayed in Fig. 3(c) have comparable heights, for this value of $\phi_{\rm int}$.

In Appendix C we discuss the fluctuation properties of the field. For values of $N_{\rm ex}$ up to 75, only a very small transient squeezing is found. In fact, squeezing is strongly affected by phase diffusion, so we should expect it to become more important for larger values of $N_{\rm ex}$, when phase-diffusion times get longer. A more complete treatment will be presented elsewhere.

VII. CONCLUSION

Quantum effects may have a substantial influence on the behavior of the two-photon micromaser. They are specially important when the pumping rate is not very high (low $N_{\rm ex}$). They make unstable the $N=0$ photon state, which according to semiclassical theory is always stable, and they also change the effective threshold for laser oscillation.

The formalism we have developed is particularly useful for the calculation of these effects. It leads to a Fokker-Planck equation for the photon-number distribution, and it allows the calculation of phase-diffusion effects for the micromaser. It represents also a very natural approach to this problem in usual laser theory. For the specific case of the two-photon micromaser, the diffusion coefficient is found to be complex, its imaginary part corresponding to a frequency shift of the field inside the cavity.

One should stress that all the predictions in this paper concern the field *inside* the cavity. The statistical properties of the field can be substantially altered by the transmission to the region outside the cavity.[24–26]

The question arises then as to how these properties of the field could be experimentally tested. They could in principle be probed by an extra atomic beam, sufficiently weak so as to have a negligible effect on the field which is being measured. The upper-state population of the outgoing atoms is given by the atomic reduced density matrix, which is obtained from (2.10),

$$\rho_{ee}(t_i+\Delta t)=\sum_N \rho_{NN}(t_i)\,|\,A(N,\Delta t)\,|^2\,, \tag{7.1}$$

where $\rho_{ee}(t_i+\Delta t)$ is the upper-state population of the atoms which have entered the cavity at time t_i and interacted with it during a time Δt. Study of $\rho_{ee}(t_i+\Delta t)$ as a function of Δt yields therefore information on $\rho_{NN}(t_i)$. On the other hand, the atomic coherence yields information on $\rho_{N,N-2}$:

$$\rho_{ef}(t_i+\Delta t)=\sum_N \rho_{N,N-2}(t_i)A(N,\Delta t)B^*(N,\Delta t)\,, \tag{7.2}$$

and therefore on the squeezing properties of the field.

The above results evidently concern quantum averages over an ensemble of identically prepared systems. They are not related, therefore, to the more current experimental procedure of continuously monitoring the system. In particular, the observation of multistability and tunneling in a single realization of the experiment cannot be discussed directly in terms of those ensemble averages; the dynamical behavior of a continuously monitored system evolving from an equilibrium state to another remains an open question, somewhat related to the "quantum jump" problem.[27–29] This subject is, however, outside the scope of this paper, and will be addressed elsewhere.

Note added in proof. Successful operation of the two-photon continuous-wave maser described here has been achieved in our laboratory after this article was submitted. The device oscillates on the $40S\rightarrow 39S$ two-photon transition of Rb.[30]

ACKNOWLEDGMENTS

We would like to thank the members of "Groupement de Recherches Coordonnées 70 [Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS)]: Expérimentation Numérique" for making their computers available to us. One of us (L.D.) wishes to acknowledge the hospitality of Ecole Normale Supérieure and the financial support of CNRS and Coordenaçâo de Aperfeiçoamento de Pessoal do Ensino Superior.

APPENDIX A: DERIVATION OF A SCULLY-LAMB EQUATION OF MOTION FOR THE MICROMASER

We discuss in this appendix the assumptions which lead to Eq. (2.13) for the reduced density matrix ρ of the field inside the micromaser cavity.

As in the Scully-Lamb approach to laser theory, we assume that dissipation can be neglected when calculating the change of ρ due to the interaction with a single atom. This should be true if the interaction time $t_{\rm int}$ of each atom with the field inside the cavity is much smaller than the cavity damping time $t_{\rm cav}$. In this approximation, the contribution from the single atom and the field loss reservoir are considered to be independent. This is actually quite apparent in Eq. (2.13).

We suppose yet that one atom at most interacts with the cavity field at a time. Let t_i be the time when the ith atom enters the cavity. We write then

$$\rho(t_{i+1})=e^{L\Delta t_i}F(t_{\rm int})\rho(t_i)\,, \tag{A1}$$

where the operator $F(t_{\rm int})$ describes the change of $\rho(t_i)$ due to the interaction with a single atom and the exponential describes field relaxation during $\Delta t_i=t_{i+1}-t_i$.

We do not assume here that the operator $F(t_{\rm int})$ is close to unity [in this case, it is easy to show that (2.13) follows from (A1) without any further assumption, by setting $F=1+\delta F$, $e^{L\Delta t_i}\simeq 1+L\Delta t_i$, and neglecting the product $L\delta F\Delta t_i$]. This is not allowed in our case, since each atom develops one or more Rabi oscillations while transiting through the cavity.

We assume instead, as in Ref. 13, that the incoming atoms obey a Poisson distribution, which implies an exponential distribution for the time intervals between two successive atoms:

$$P(\Delta t_i)=Re^{-R\Delta t_i}\,, \tag{A2}$$

R^{-1} being the average time interval (t_{at}). The density operator is now a function of the random variables Δt_i, assumed to be statistically independent. The statistical average is given by

$$\bar{\rho}(t_{i+1}) = \int_0^\infty d\Delta t_i R e^{-R\Delta t_i} e^{L\Delta t_i} F(t_{int})\bar{\rho}(t_i) = \frac{1}{1-\frac{L}{R}} F(t_{int})\bar{\rho}(t_i) . \quad \text{(A3)}$$

In (A3) we have decorrelated the average over the product $e^{L\Delta t_i} F(t_{int})\rho(t_i)$, since $\rho(t_i)$ does not depend on Δt_i (it depends only on the previous time intervals).[13] We get then, from this expression,

$$R[\bar{\rho}(t_{i+1})-\bar{\rho}(t_i)] = L\bar{\rho}(t_{i+1}) + R[F(t_{int})\bar{\rho}(t_i)-\bar{\rho}(t_i)] . \quad \text{(A4)}$$

Since $\Delta t_i \ll t_{cav}$, one can replace the left-hand side of (A4) by $\dot{\rho}$, and $L\bar{\rho}(t_{i+1})$ by $L\bar{\rho}(t_i)$. This amounts to assuming that the *statistically averaged* $\bar{\rho}$ does not change much between t_i and t_{i+1} [before this average is taken, the operator $\rho(t)$ may present large fluctuations, due to the fact that $F(t_{int})$ is not close to unity; this is made evident for instance by Fig. 8 of Ref. 15]. One gets thus the rate equation (2.13). For the sake of notational simplicity we suppress in the text the bar over ρ.

We see therefore that, when $F(t_{int})$ is not close to unity, a Poissonian atomic distribution is implicit when writing (2.13). Indeed, using arguments similar to those in Ref. 13, one can show that the diffusion coefficient $a_2(n)$, given by (4.11), corresponds to a Poissonian distribution of the incoming atoms.

APPENDIX B: PHASE DIFFUSION IN THE SCULLY-LAMB MODEL OF THE ONE-PHOTON LASER

We show here that the δ-expansion method provides a very natural way of getting the phase-diffusion constant in usual laser theory.

We start from the Scully-Lamb equation of motion for the off-diagonal matrix elements of the laser field reduced density operator [Eq. (16) of Chap. 17 of Ref. 18]:

$$\dot{\rho}_{N,N+1} = -\frac{1}{2}\frac{(2N+3)A+B/4}{1+B(2N+3)/2A+(B/4A)^2}\rho_{N,N+1} + \frac{A[N(N+1)]^{1/2}}{1+B(2N+1)/2A+(B/4A)^2}\rho_{N-1,N} - \frac{C}{2}(2N+1)\rho_{N,N+1} + C\sqrt{(N+1)(N+2)}\rho_{N+1,N+2} , \quad \text{(B1)}$$

where

$$A = 2r_a(g/\gamma)^2 , \quad \text{(B2)}$$

$$B = 8r_a(g/\gamma)^4 , \quad \text{(B3)}$$

$$C = \omega/Q = t_{cav}^{-1} . \quad \text{(B4)}$$

r_a is the atomic pumping rate into the excited state, g is the atom-field-coupling constant, and γ^{-1} is the atomic lifetime. Evidently, r_a corresponds to our pumping rate R and γ^{-1} is related to t_{int}. We have in particular $r_a = N_{ex}/t_{cav}$.

We define now

$$\Theta = g(2N_{ex})^{1/2}/\gamma , \quad \text{(B5)}$$

so that

$$A = \Theta^2/t_{cav}, \quad B = 2\Theta^4/N_{ex}t_{cav} . \quad \text{(B6)}$$

The threshold for oscillation is given by the condition[18] $A = C$, and therefore corresponds to $\Theta = 1$.

We define also

$$n = N/N_{ex}, \quad \delta = 1/N_{ex}, \quad g(n,\tau) = \rho_{N,N+1}(t) , \quad \text{(B7)}$$

where τ is the dimensionless time

$$\tau = r_a t . \quad \text{(B8)}$$

Equation (B1) becomes then

$$\frac{d}{d\tau}g(n,\tau) = -\frac{1}{2}\frac{\Theta^2(2n+3\delta)+\Theta^4\delta^2/2}{1+\Theta^2(2n+3\delta)+\Theta^4\delta^2/4}g(n,\tau) + \frac{\Theta^2\sqrt{n(n+\delta)}}{1+\Theta^2(2n+\delta)+\Theta^4\delta^2/4}g(n-\delta,\tau) - \left[n+\frac{\delta}{2}\right]g(n,\tau) + \sqrt{(n+\delta)(n+2\delta)}g(n+\delta,\tau) . \quad \text{(B9)}$$

Developing now this expression in powers of δ, we get

$$\frac{d}{d\tau}g(n,\tau) = -\mu(n)g(n,\tau) - \delta\frac{\partial}{\partial n}[f_1(n)g(n,\tau)] + \frac{\delta^2}{2}\frac{\partial^2}{\partial n^2}[f_2(n)g(n,\tau)] + O(\delta^3) , \quad \text{(B10)}$$

where

$$\mu(n) = \frac{\delta^2}{8n}(1+\Theta^2) , \quad \text{(B11)}$$

$$f_1(n) = \frac{\Theta^2}{1+2\Theta^2 n}\left[n+\frac{3\delta/2}{1+2\Theta^2 n}\right] - n - \frac{\delta}{2} , \quad \text{(B12)}$$

$$f_2(n) = \frac{\Theta^2 n}{1+2\Theta^2 n} + n . \quad \text{(B13)}$$

As in the two-photon maser case (see Sec. V), $f_1(n)$ and $f_2(n)$ are, within terms of the order of δ, identical to the drift and diffusion coefficients of the Fokker-Planck equation for the diagonal photon-number distribution $\rho(n,\tau)$. If $\mu(n)$ were equal to zero, $g(n,\tau)$ would thus evolve rapidly into a steady state approximately equal to the steady-state photon-number distribution $\rho_S(n)$. There is only one potential minimum around

$$n_S = \frac{1}{2}\left[1-\frac{1}{\Theta^2}\right] \quad \text{(B14)}$$

for the Scully-Lamb model discussed here and the steady

state is reached within a time of order t_{cav}. If the laser is well above threshold, $\rho_S(n)$ is well peaked around n_S. Taking now into account the term proportional to $\mu(n)$, we can approximate the solution of (B10) by the adiabatic expression

$$g(n,\tau)\simeq\rho_S(n)e^{-\mu(n_S)\tau} . \tag{B15}$$

The field expectation value thus decays with a rate which can be identified with the phase-diffusion coefficient and which, in real time units, is

$$\mu=r_a\mu(n_S)=(1+\Theta^2)/8N_S t_{cav} , \tag{B16}$$

where $N_S=n_S N_{ex}$ is the average value of N in steady state. The constant μ, given by Eq. (B16), is indeed much smaller than t_{cav}^{-1}, which validates the adiabatic approximation made in writing Eq. (B15).

Expression (B15) corresponds precisely to the Scully-Lamb ansatz,[18] to which we arrive, in the present formalism, in a very natural way. The phase-diffusion constant (B16) coincides with the one found by Scully and Lamb,[18] in spite of the fact that, in our treatment, no expansion of the equation (B1) in powers of B/A has been made.

In the usual Scully-Lamb model, the atom-cavity interaction time is averaged over an exponential distribution.[18] It is possible to consider instead a fixed interaction time t_{int}, as is usually done in the context of micromaser studies.[13,31] In this case, multistable operation of the system becomes possible, exactly as in the two-photon maser situation discussed in this paper. The method of this appendix can again be applied in order to obtain the phase-diffusion coefficient in this case. We start from the corresponding equation of motion for the reduced density operator of the field:[13,31]

$$\begin{aligned}\frac{d}{d\tau}g(n,\tau)=&g(n,\tau)[\cos(\phi\sqrt{n+\delta})\cos(\phi\sqrt{n+2\delta})-1]\\&+g(n-\delta,\tau)\sin(\phi\sqrt{n})\sin(\phi\sqrt{n+\delta})\\&-\tfrac{1}{2}(2n+\delta)g(n,\tau)\\&+\sqrt{(n+\delta)(n+2\delta)}g(n+\delta,\tau) ,\end{aligned} \tag{B17}$$

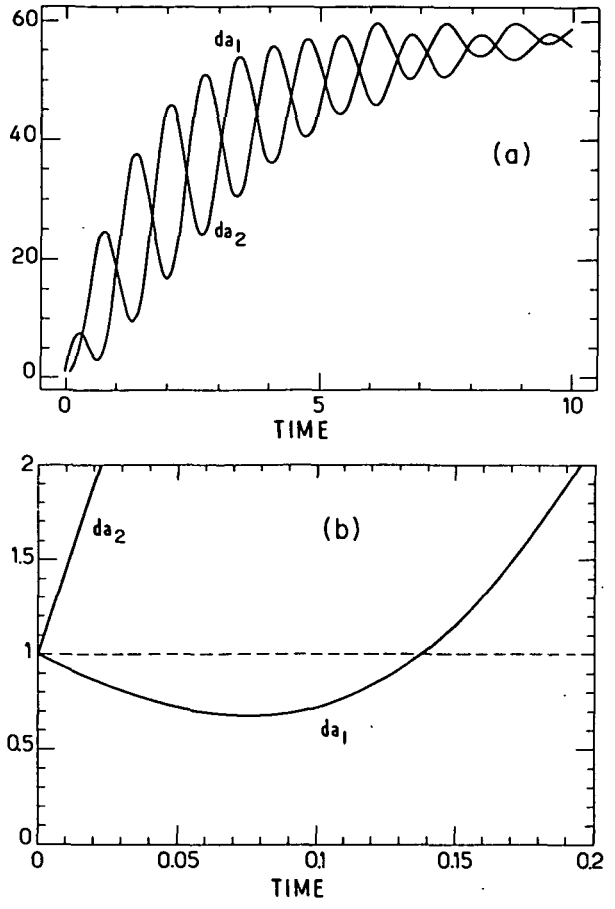


FIG. 14. Evolution of the quadrature components variances of the field inside the cavity. The decay time is twice the phase-diffusion time, while the oscillation frequency is twice the frequency shift. (a) Same conditions as in Fig. 12 ($N_{ex}=30$); (b) evidence of squeezing for $N_{ex}=75$, other conditions being the same as in (a). Squeezing is strongly affected by phase diffusion for this value of N_{ex}. Times are expressed in units of t_{cav}.

where we have used the definitions (B7) and (B8), and we have further defined

$$\phi=(N_{ex})^{1/2}gt_{int} . \tag{B18}$$

Developing (B17) in powers of δ, we get

$$\begin{aligned}\frac{d}{d\tau}g(n,\tau)=&-\frac{\delta^2}{8n}(1+\phi^2)g(n,\tau)-\delta\frac{\partial}{\partial n}\left[g(n,\tau)\left[\sin^2(\phi\sqrt{n})-\frac{\phi\delta}{4\sqrt{n}}\sin(2\phi\sqrt{n})-n-\frac{\delta}{2}\right]\right]\\&+\frac{\delta^2}{2}\frac{\partial^2}{\partial n^2}\{g(n,\tau)[\sin^2(\phi\sqrt{n})+n]\}+O(\delta^3) .\end{aligned} \tag{B19}$$

From this equation, we get the phase-diffusion constant

$$\mu=(1+\phi^2)/8N_L t_{cav} ,$$

where N_L is the number of photons associated with the local maximum of the steady-state distribution which is closest to the initial average photon number (assuming that the initial distribution is sufficiently sharp—cf. discussion in Sec. V B). This result makes it clear that the frequency shift found in Sec. V B is indeed a peculiarity of two-photon micromasers.

APPENDIX C: FLUCTUATIONS IN THE TWO-PHOTON MICROMASER

In order to discuss the fluctuation properties of the field, let us consider the quadrature components,

$$a_1 = a + a^\dagger, \quad a_2 = (a - a^\dagger)/i \ . \tag{C1}$$

Let da_1 and da_2 be the variances of a_1 and a_2, respectively. Squeezing will occur if either da_1 or da_2 gets smaller than 1.[21-23]

From

$$da_1 = 2\mathrm{Re}\langle a^2\rangle + 1 + 2\langle a^\dagger a\rangle - 4\mathrm{Re}^2\langle a\rangle \ , \tag{C2}$$

$$da_2 = -2\mathrm{Re}\langle a^2\rangle + 1 + 2\langle a^\dagger a\rangle - 4\mathrm{Im}^2\langle a\rangle \ , \tag{C3}$$

it is clear that these variances depend on ρ_{NN}, $\rho_{N,N+1}$, and $\rho_{N,N+2}$. Since the off-diagonal elements of the density matrix go to zero as $t \to \infty$, it follows that in this limit da_1 and da_2 go to $1+2\langle N\rangle$, and therefore the steady state presents no squeezing.

Squeezing could occur, however, after the establishment of local equilibrium, but before phase diffusion takes place, that is, for times larger than t_{cav} but smaller than K^{-1} given by (5.9).

A Fokker-Planck type equation for $\rho_{N,N+2}$ can be calculated in the same way as above for $\rho_{N,N+1}$. Let $h(n,\tau)=\rho_{N,N+2}(t)$, with n defined by (4.3) and $\tau = Rt$. We find then, setting for simplicity $n_T = 0$ and $\sigma = 0$,

$$\begin{aligned}\frac{d}{d\tau}h(n,\tau) = -h(n,\tau)\left\{4\delta^2\left[\phi_{\mathrm{int}}+\frac{1}{4n}\right]+2i\delta\phi_{\mathrm{int}}\left[1-\frac{\delta}{2n}\left[1-\frac{\sin(2n\phi_{\mathrm{int}})}{2n\phi_{\mathrm{int}}}\right]\right]\right\} \\ +\delta\frac{\partial}{\partial n}(h(n,\tau)\{\cos(2n\phi_{\mathrm{int}})-5\delta\phi_{\mathrm{int}}\sin(2n\phi_{\mathrm{int}})-1+2n+2\delta-2i\delta\phi_{\mathrm{int}}[\cos(2n\phi_{\mathrm{int}})-5\delta\phi_{\mathrm{int}}\sin(2n\phi_{\mathrm{int}})]\}) \\ +\delta^2\frac{\partial^2}{\partial n^2}\{h(n,\tau)[1-\cos(2n\phi_{\mathrm{int}})+n]\}+O(\delta^3) \ .\end{aligned} \tag{C4}$$

It follows from this expression that the decay time for $\rho_{N,N+2}$ is four times smaller than the decay time for $\rho_{N,N+1}$, while the oscillation frequency of $\rho_{N,N+2}$ is twice the frequency of $\rho_{N,N+1}$. This implies that the term $\mathrm{Re}\langle a^2\rangle$ in (C2) and (C3), which depends on $\rho_{N,N+2}$, will decay two times faster than the terms $\mathrm{Re}^2\langle a\rangle$ and $\mathrm{Im}^2\langle a\rangle$, which involve $\rho_{N,N+1}$. It is clear also that da_1 and da_2 will oscillate with a frequency equal to twice the frequency shift found in Sec. V. These predictions are precisely verified by the numerical calculation, starting from the master equation (2.16), of da_1 and da_2. The result is exhibited in Fig. 14, which also displays the occurrence of a very small transient squeezing of the field.

*Permanent address: Departamento de Fisica, Pontificia Universidade Catolica, 22453 Rio de Janeiro, Brazil.
†Also at Yale University, New Haven, CT 06520.

[1] P. P. Sorokin and N. Braslau, IBM J. Res. Dev. **8**, 177 (1964).
[2] A. M. Prokhorov, Science, **149**, 828 (1965).
[3] V. S. Letokhov, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **7**, 284 (1968) [JETP Lett. **7**, 221 (1968)].
[4] K. J. McNeil and D. F. Walls, J. Phys. A **8**, 104, 111 (1975).
[5] H. P. Yuen, Phys. Lett. **51A**, 1 (1975).
[6] H. P. Yuen, Phys. Rev A **13**, 226 (1976).
[7] L. M. Narducci, W. W. Eidson, P. Furcinitti, and D. C. Eteson, Phys. Rev. A **16**, 1665 (1977).
[8] T. Hoshimiya, A. Yamagishi, N. Tanno, and H. Inaba, Jpn. J. Appl. Phys. **17**, 2177 (1978); N. Nayak, B. K. Mohanty, Phys. Rev. A **19**, 1204 (1979).
[9] Z. C. Wang and H. Haken, Z. Phys. B **55**, 361 (1984); **56**, 77 (1984); **56**, 83 (1984).
[10] B. Nikolaus, D. Z. Zhang, and P. E. Toschek, Phys. Rev. Lett. **47**, 171 (1981); M. M. T. Loy, *ibid.* **41**, 473 (1978); H. Schlemmer, D. Frölich, and H. Welling, Opt. Commun. **32**, 141 (1980).
[11] P. Goy, J. M. Raimond, M. Gross, and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. **50**, 1903 (1983).
[12] D. Meschede, H. Walther, and G. Müller, Phys. Rev. Lett. **54**, 551 (1985).
[13] P. Filipowicz, J. Javanainen, and P. Meystre, Phys. Rev. A **34**, 3077 (1986).
[14] P. Filipowicz, J. Javanainen, and P. Meystre, Opt. Commun. **58**, 327 (1986).
[15] M. Brune, J. M. Raimond, and S. Haroche, Phys. Rev. A **35**, 154 (1987).
[16] D. Grischkowsky, M. M. T. Loy, and P. F. Liao, Phys. Rev. A **12**, 2514 (1975).
[17] H. I. Yoo and J. H. Eberly, Phys. Rep. **118**, 239 (1985).
[18] M. Sargent III, M. O. Scully, and W. E. Lamb, *Laser Physics* (Addison-Wesley, Reading, Mass., 1974).
[19] N. G. Van Kampen, *Stochastic Processes in Physics and Chemistry* (North-Holland, Amsterdam, 1981).
[20] R. J. Glauber, in *Optical Coherence and Photon Statistics,* Proceedings of the Les Houches Summer School, edited by C. de Witt, A. Blandin, and C. Cohen-Tannoudji (Gordon and Breach, New York, 1965).

[21]D. F. Walls, Nature (London) **306**, 141 (1983), and references therein.
[22]A. Heidmann, J. M. Raimond, and S. Reynaud, Phys. Rev. Lett. **54**, 326 (1985).
[23]A. Heidmann, J. M. Raimond, S. Reynaud, and N. Zagury, Opt. Commun. **54**, 189 (1985).
[24]B. Yurke, Phys. Rev. A **29**, 408 (1984).
[25]M. J. Collet and C. W. Gardiner, Phys. Rev. A **31**, 3761 (1985).
[26]M. J. Collet and D. F. Walls, Phys. Rev. A **32**, 2887 (1985).
[27]R. J. Cook and H. J. Kimble, Phys. Rev. Lett. **54**, 1023 (1985).
[28]J. Javanainen, Phys. Rev. A **33**, 2121 (1986).
[29]C. Cohen-Tannoudji and J. Dalibard, Eur. Phys. Lett. **1**, 441 (1986).
[30]M. Brune, J. M. Raimond, P. Goy, L. Davidovich, and S. Haroche (unpublished).
[31]J. Krause, M. O. Scully, and H. Walther, Phys. Rev. A **34**, 2032 (1986).

Résumé français :

Nous avons réalisé le premier oscillateur maser à deux photons. Il fonctionne en continu sur une transition atomique à deux photons. Sa réalisation a été rendue possible grâce à l'utilisation d'une cavité micro-onde supraconductrice (f = 68 GHz) de très haute surtension (Q = 10^8) accordée sur une transition à deux photons entre états de Rydberg du Rubidium présentant des configurations de niveaux particulièrement favorables.

Ce système suscite un grand intérêt aussi bien théorique qu'expérimental car c'est à la fois le premier oscillateur utilisant un processus atomique intrinsèquement non linéaire et un système quantique microscopique où seulement quelques atomes interagissent avec quelques dizaines de photons (micromaser). C'est donc un système particulièrement bien adapté à l'étude quantique de l'interaction entre matière et rayonnement.

Ce travail présente la description de l'expérience ainsi qu'une étude théorique d'abord semi-classique puis quantique des propriétés spécifiques du micromaser à deux photons. Dans le modèle quantique, nous nous sommes attachés à prendre en compte les phénomènes de fluctuations. Nous montrons que leur importance est primordiale pour la compréhension de ce système microscopique.

Résumé anglais :

We have operated the first two-photon maser oscillator. It oscillates in a C.W. regime on a two-photon atomic transition. The use of Rubidium Rydberg states associated with a very high Q($\simeq 10^8$) superconducting microwave cavity (f = 68 GHz) have made it possible to achieve oscillation with only a few atoms interacting with a few tens of photons (micromaser).

This device combines two interesting features : it is a quantum oscillator working on an intrinsically non linear effect and it is a micromaser. It presents a great theoretical and experimental interest in the study of the quantum description of atom-field interaction.

This work dscribes the experiment and gives a theoretical study of this device. We present first a semi-classical approach and next a full quantum description taking into account any fluctuation effects which are very important in this microscopic oscillator.