HAL
open science

Effets cohérents optiques et non linéaires dans les solides et nouvelle plateforme pour l'optique quantique

Kamel Bencheikh

To cite this version:

Kamel Bencheikh. Effets cohérents optiques et non linéaires dans les solides et nouvelle plateforme pour l'optique quantique. Physique [physics]. Université Paris Saclay, 2021. tel-03451124

HAL Id: tel-03451124

https://hal.science/tel-03451124v1

Submitted on 26 Nov 2021

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.

Habilitation à Diriger les Recherches

présentée par

Kamel Bencheikh

Effets cohérents optiques et non linéaires dans les solides et nouvelle plateforme pour l'optique quantique

---

Soutenue le 25 Janvier 2021 devant le jury composé de :

M. Benoît BOULANGER	University Grenoble Alpes	Président
M. Fabien BRETENAKER	Université Paris-Saclay	Rapporteur
Mme Sara DUCCI	Université de Paris	Rapporteuse
M. Philippe GOLDNER	Institut de Recherche de Chimie Paris	Rapporteur
M. Sébastien TANZILLI	Institut de Physique de Nice	Examinateur
Mme Rosa TUALLE-BROURI	Institut d'Optique Graduate School	Examinatrice
M. Hugo ZBINDEN	Université de Genève	Examinateur

ÉCOLE DOCTORALE
Ondes et Matière
(EDOM)

Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies – C2N
10, Boulevard Thomas Gobert
91120 Palaiseau

Table des matières

Remerciements **7**

Introduction **9**

Curriculum Vitae **15**
Titres universitaires 15
Parcours 15
Enseignement 16
Projets 16
Encadrement 17

Activités de recherche **21**
1. Effets cohérents dans les cristaux dopés aux ions de terres rares 21
2. Lumière lentes dans les semi-conducteurs 35
3. Nanocavités cristal photoniques à 800 nm pour le couplage lumière-atome 38
4. Génération des triplets de photons 45

Perspectives **53**

Production scientifique **59**
Articles dans les revues à comité de lecture 59
Faits marquants 62
Conférences 62
Congrès 65
Séminaires et workshops 69

Annexe : Articles **71**
Hyperfine interaction of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 72
Electromagnetically Induced Transparency in Er^{3+} ion-doped Y_2SiO_5 crystal . . . 81
Ultraslow Light Propagation in an Erbium Ion-Doped Crystal 89
Slow light propagation in a photonic crystal nanocavity and linewidth narrowing . 94
Continuous-variable triple-photon states quantum entanglement 100
Photonic crystal nanocavities with optical resonances around 800 nm 106

Bibliographie **113**

Remerciements

Remerciements

Introduction

Ce mémoire retrace mon parcours de chercheur depuis que j'ai obtenu le 18 décembre 1996 le grade de docteur de l'université Paris-Nord, pour une thèse effectuée au Centre National d'Etudes en Télécommunications (CNET) à Bagneux. A la fin de ma thèse, j'ai eu la chance de pouvoir rejoindre l'équipe du Professeur Jürgen Mlynek au département de physique à l'université de Constance en Allemagne pour un postdoctorat financé par la fondation Alexandre Von Humboldt [1]. En octobre 1999, j'intègre le CNRS comme chargé de recherche. D'abord à Bagneux dans les locaux du CNET, puis à Marcoussis à partir de 2001, où notre laboratoire est devenu le Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN) en s'associant au Laboratoire de Microstructures et Microelectroniques (L2M). Le 1er juin 2016, notre laboratoire change de statut. Il devient le Centre de Nanosciences et de Nanotechnogies (C2N), en s'associant à l'Institut d'Electronique Fondamentale (IEF), pour former une nouvelle unité mixte du CNRS et de l'Université Paris-Saclay. En Octobre 2018, j'ai vécu un deuxième déménagement professionnel en emménageant dans le nouveau bâtiment du C2N à Palaiseau.

FIGURE 1 – C2N sous la neige. Février 2019.

L'optique non-linéaire, l'optique quantique et l'interaction lumière-matière sont au coeur de mes travaux de recherche.

Ma thèse a porté sur l'étude des propriétés quantiques de la lumière et les mesure quantiques non destructives (QND) dont le coeur est l'interaction non-linéaire du second ordre

1. http ://www.humboldt-foundation.de

et la manipulation des fluctuations quantiques des faisceaux jumeaux en regime de variables continues. Au cours de ma thèse j'ai pu démontrer pour la première fois le principe de mesure quantique non destructive sur un état quantique de la lumière [1].

Après ma thèse, j'ai rejoint le groupe de Jürgen Mlynek à l'université de Constance en Allemagne pour un post-doctorat qui allait durer plus deux ans.

Le but de mon travail pendant cette période était la spectroscopie à très haute résolution d'un cristal dopé aux ions de terres rares (Europium) ayant une résonance optique d'une largeur inférieure au kHz, en vue de l'élaboration d'une référence en fréquence ayant une stabilité relative de 10^{-17}. Un oscillateur laser possédant une telle stabilité constitue un outil puissant pour des applications fondamentales tel que le test du principe d'équivalence d'Einstein par la vérification de l'invariance de la position locale. Pour mener à bien ces études de spectroscopie, il a été nécessaire de développer une source laser dont la longueur d'onde d'émission correspond à la transition des ions Eu^{3+}, c'est à dire à 580 nm et dont la finesse et la stabilité spectrale sont de l'ordre de la largeur spectrale de la transition atomique.

Mon postdoctorat en Allemagne m'a fait découvrir un nouveau domaine de recherche dédié au cristaux dopés aux ions de terres et à leur utilisation en tant que ressource pour l'information quantique. Les ions de terres ont des propriétés optiques proches de celles des atomes neutres en vapeur ou bien refroidis. L'exaltation des effets non linéaires par interaction lumière-matière est au coeur de l'information quantique. Dans ce contexte, les ions de terres rares figés dans des matrices cristallines constituent de bons candidats pour l'exaltation de l'interaction lumière-matière. Parmi les effets non linéaires, la transparence induite électromagnétiquement, un phénomène qui permet de rendre un milieu atomique transparent même s'il est excité par des champ électromagnétiques en résonance, supprimant ainsi les pertes optiques linéaires tout en exaltant les effets non linéaires engendrés à cause de l'excitation résonante. D'autres effets physiques sont également associés à la transparence induite. On peut notamment citer le mélange à trois ondes, l'effet Kerr géant ou encore le ralentissement de la lumière jusqu'à quelques mètres par seconde. Le ralentissement de la lumière stimule de plus en plus la communauté scientifique car il permet d'augmenter le temps d'interaction, et donc l'efficacité d'interaction entre la lumière et la matière. La transparence induite permet également de stocker la lumière dans un système atomique tout en préservant ses propriétés quantiques [2, 3], ouvrant ainsi la voie vers les mémoires optiques. On comprend donc l'interêt que porte la communauté scientifique à la transparence induite électromagnétiquement et aux ions de terres rares qui offrent une plateforme pour l'information quantique plus simple à manipuler que les atomes froids.

Dès mon recrutement au CNRS en 1999, je me suis intéressé à ce nouveau domaine dédié à l'optique quantique dans les solides dopés aux ions de terres. Néanmoins, le chemin était encore long et sinueux avant d'aboutir à des démonstrations concrètes en information quantique. J'ai choisi de m'attaquer aux ions Erbium car la transition optique correspond à la longueur d'onde des télécommunications contrairement aux ions Europium. Dans mon esprit, l'Erbium était donc le choix idéal pour l'information quantique pour leur compatibilité avec les dispositifs télécoms et les lasers matures émettant autour de 1.55 μm. Malheureusement, je me suis rapidement rendu compte que les propriétés spectroscopiques des ions erbium étaient loin d'être bien connues lorsque j'ai commencé cette activité. Une des premières étapes a consisté donc à étudier en profondeur les propriétés spectroscopiques du cristal

dopé aux ions erbium 167 triplement ionisés. Le choix particulier de l'isotope 167 était motivé par le fait que seul cet isotope possède un moment nucléaire non nul I=7/2, et donc susceptible de présenter une structure hyperfine due au couplage spin électronique-spin nucléaire. Cette structure hyperfine, jouera un rôle important dans l'implémentation de la transparence induite électromagnétiquement.

Pour la réalisation de cette étude spectroscopique, j'ai eu le change de pouvoir collaborer avec Ivan Lorgeré, Jean-Louis Le Gouët, Fabien Bretenaker du Laboratoire Aimé Cotton et Philippe Goldner et Olivier Guillot-Noël de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie Paris, spécialistes des matériaux dopés aux ions de terres rares et des techniques de spectroscopie optique et de resonance paramagnétique. Cela a été également l'occasion d'encadrer la thèse d'Elisa Baldit. L'étude spectroscopique a permis de mieux cerner les propriétés optiques des ions Erbium, d'identifier et d'exploiter deux systèmes de niveaux d'energies, dits systèmes en Λ, au sein des sous-niveaux hyperfins des ions pour la démonstration de la transparence induite.

Dans ce cristal, nous avons par ailleurs exploité le phénomène d'oscillation cohérente de population [4] pour démontrer une propagation ultra lente de la lumière, avec des vitesses de groupe d'environ 3 m/s [5]. Outre cette vitesse, le résultat a été bien accueilli par la communauté car il démontrait pour la première fois la possibilité d'utiliser l'élargissement inhomogène pour accorder la vitesse de groupe.

Nous avons également démontré que la lumière pouvait être ralentie à l'aide du même phénomène dans un des composants de base des télécommunications optiques : les fibres dopés aux ions erbium. Des vitesses de groupe inférieures à 1600 m/s ont ainsi été obtenues dans les fibres optiques à double coeurs dopées en anneau avec des ions Erbium [6]. Dans cette experience simple, nous avons réussi à faire propager la lumière à la vitesse du son dans la matière.

Le ralentissement de la lumière a été un sujet de recherche très actif. Outre le caractère excitant de pouvoir «modifier» une des constantes fondamentales de la physique, la vitesse de la lumière, la possibilité de contrôler celle-ci ouvre la voie à de nombreuses applications, parmi lesquelles les lignes à retard, les mémoires tampons tout-optiques ou encore d'exaltation de l'interaction acousto-optique.

En physique atomique, l'approche privilégiée pour le ralentissement de la lumière utilise des systèmes atomiques à deux ou à trois niveaux d'énergie qui, par interaction non linéaire cohérente, sont amenés au seuil de transparence optique et permettent de bénéficier de fortes dispersions tout en minimisant les pénalités associées à l'absorption. Aux fortes dispersions sont associées des réductions de la vitesse de la lumière pouvant atteindre 8 ordres de grandeur par rapport à celle dans le vide. Le contexte de ces recherches est celui de l'exaltation des réponses non linéaires, de l'optique quantique et de l'information quantique.

En photonique, les modes lents résultent d'une ingénierie géométrique utilisant usuellement des systèmes possédant une périodicité d'indice de réfraction, avec ou sans défauts, et conduisant à une forte dispersion associée à des bandes photoniques plates. L'ingénierie géométrique permet de retarder la lumière dans des dispositifs de petite taille, avec des réductions typiques de 2 ordres de grandeur par rapport à la vitesse de la lumière dans le vide. Ces recherches sont également réalisées dans un contexte d'amélioration de la réponse non linéaire et des applications telles que les lignes à retard sont attendues.

Une suite logique dans mes activités de recherche, compte tenu des capacités technologiques de mon laboratoire, a été d'associer ces deux approches en combinant l'ingénierie par optique non linéaire cohérente de la vitesse de groupe et l'ingénierie géométrique de modes de micro/nano-résonateurs à forts coefficients de qualité (Q) ou de guides à modes lents. Les enjeux en sont multiples. Ils se situent aussi bien dans la compréhension de l'interaction de la lumière lente par effet non-linéaire cohérent avec les modes photoniques des résonateurs à fort Q ou de guides optiques à modes lents, que dans l'évaluation de différentes applications inédites de ces résonateurs.

Nous avons par exemple démontré qu'on pouvait augmenter le facteur de qualité d'une nanocavité à cristal photonique en y insérant des puits quantiques dans lesquels l'oscillation cohérente de population est engendrée. Le ralentissement de la lumière par effet d'oscillation cohérente de population contribue à augmenter la durée de photons dans la nanocavité, comme si les photons faisaient le même nombre d'allée-retour mais au ralenti. Après cette réalisation dans une cavité à cristal photonique, une partie de la communauté continuait à s'interroger sur l'augmentation de la durée de vie des photons et sa deduction du facteur de qualité ou de la largeur de la résonance. Pour clore le débat, en collaboration avec Yannick Dumeige de l'institut FOTON, une experience a été réalisée dans une microsphère dopée aux ions Erbium, dans lesquelles la lumière est ralentie d'un facteur de l'ordre de 10^6. La durée de vie des photons a été mesurée à l'aide de la technique de "ring down", et nous avons mesuré une durée de vie de 2.5 ms [7], correspondant à un facteur de qualité record de 10^{12}, alors que le facteur de qualité initial était inférieur à million.

L'ensemble de ces travaux a été effectué en collaboration avec l'équipe de Yannick Dumeige, de Yannick De Wilde et avec celle de Philippe Lalanne. Le projet ANR CALIN (Cavités à forts facteurs de qualité, guides à modes lents et lumière lente par interaction non linéaire) dont je fus le porteur a permis de mener à bien ces travaux et à financer entre autre la thèse de Patricio Grinberg que j'ai encadré.

Les nanodispositifs à cristal photonique permettent non seulement de manipuler la vitesse de groupe de la lumière mais aussi de confiner celle-ci dans volumes sub-longueurs d'ondes. En y plaçant des atomes suffisamment à proximité, ils permettent d'atteindre le régime de couplage fort atome-lumière, où un seul photon suffit à manipuler un atome et inversement où un atome unique permet de modifier les propriétés d'un photon. C'est là le domaine privilégier de l'électrodynamique quantique en cavité qui a permit de mieux comprendre les aspects fondamentaux de l'interaction lumière-matière et qui a conduit à de nombreuses démonstrations fondamentales. Les structures à cristal photonique ont ouvert une nouvelle voie vers le couplage fort atomes-photons. C'est cette voie que j'ai entrepris d'explorer depuis quatre ans au C2N. D'une part en explorant la voie traditionnelle de l'électrodynamique quantique en cavité en développant des nanocavités à cristal photonique ayant des résonances optiques compatibles avec les atomes alcalins, c'est à dire autour de 800 nm. Ce travail a été le sujet de thèse d'Ivens Saber soutenue en Octobre 2018, et qui a été initié suite au désir d'initier une collaboration avec Gabriel Dutier du LPL pour étudier l'interaction des atomes d'Argon survolant les nanocavités et ressentant l'influence du champ électromagnétique du mode résonant. Le développement de nanocavités à cristal photonique dans le domaine du proche infrarouge a été un réel challenge et a nécessité un effort considérable pour mettre au point le processus technologique de fabrication. Il n'aurait

pas été possible sans l'aide précieuse de Fabrice Raineri et son expertise en physique des semi-conducteurs et son savoir-faire dans leur technologie. La seconde voie explorée est une nouvelle approche de l'électrodynamique quantique sans cavité, où les atomes sont couplés aux modes confinés se propageant avec de faibles vitesses de groupe dans des guides optique. Dans ces structures le couplage atome-lumière depend à la fois du confinement transverse de la lumière et du fort indice de groupe. En collaboration avec le groupe de Julien Laurat du LKB et Christophe Sauvan à l'institut nous explorons cette voie dans le cadre d'un projet ANR NANOSTRONG et du projet WAVEGUIDEQED financé par le DIM SIRTEQ. Cette activité de recherche fait partie depuis cette année 2020 du projet européen DAALI, projet auquel je participe entant que partenaire. J'ai le plaisir de compter dans l'équipe pour cette activité, Malik Kemiche un post-doctorant qui a fait sa thèse à l'INL à Lyon et Sukanya Mahapatra qui fait sa thèse sur ce projet depuis Novembre 2019.

L'optique quantique reste un domaine de recherche qui me tient à coeur. J'entretiens depuis très longtemps une forte collaboration avec l'équipe de Benoît Boulanger de l'institut Néel à Grenoble pour l'étude et la génération de nouveaux états quantiques de la lumière Il s'agit des états triplets [8] où un photon de forte énergie se scinde en triplets de photons de moindre énergie dans un milieu présentant une non linéarité optique du troisième ordre. J'ai codirigé avec Benoît Boulanger deux thèses sur le sujet. Celle d'Audrey Dot, suivie par celle d'Arien Borne.

Ces états triplets sont très intéressants d'un point de vue fondamental comme l'étaient il y a plus de 40 années les photons jumeaux. ils permettent de produire des états de lumière purement quantiques et dont la statistique va au delà des statistiques gaussiennes associées aux états cohérents de la lumière générés par des lasers ou associées aux états de lumière ayant leurs fluctuations quantiques comprimées et dont la création est basée sur la génération de photons jumeaux par un processus non linéaire du second ordre. La difficulté de la génération des états triplets réside dans le faiblesse de l'interaction non linéaire du troisième ordre.

Au cours de ces dernières années, nous avons mené de nombreuses études théoriques sur les propriétés quantiques des états triplets, explorant l'efficacité et la statistique de leur génération, le comportement de leur bruit quantique, leurs correlations quantiques et leur intrication quantique à trois corps. En 2018, nous avons produit une avancée majeure en comprenant que contrairement aux photons jumeaux, le régime d'amplification, c'est à dire en présence d'injection, produisait, voire induisait des propriétés quantiques interessantes, tout en augmentant l'efficacité de l'interaction [9]. Depuis 2018, dans le cadre du projet ANR TRIQUI, nous nous attelons à la génération des états triplets dans des guides d'ondes non linéaires conçus à cet effet. En parallèle, je continue d'explorer les propriétés quantiques des états triplets avec l'aide précieuse de Da Zhang, étudiant en thèse de l'université de Xi'an en Chine, présent au C2N pour une période d'un an et à l'aide de l'expertise de David Barral en postdoctorat.

Toujours dans le domaine de l'optique quantique et en parallèle à mes activités sur les états triplets de photons, je participe avec enthousiasme à deux activités de recherche alliant l'optique quantique à la photonique intégrée. La première concerne la manipulation des fluctuations quantiques de champs électromagnétiques brillants pour en faire une source intégrée d'états intriqués multimodes. Cette manipulation est réalisée dans une plateforme

intégrée de guides d'ondes non linéaires en Niobate de Lithium couplés entre-eux, fabriqués par l'équipe de Sebastien Tanzilli à InPhyNi. La seconde activité quant à elle concerne la manipulation des photons uniques. Traditionnellement les photons uniques en optique servent à véhiculer l'information sous forme de qubit codés sur les états de polarisation. Dans cette activité, l'information sera codée sur les fréquences dans un espace de Hilbert de grandes dimensions. On parle alors de qudit. Les photons dans des états fréquences sont obtenus par un processus non linéaire, le mélange à quatre ondes, dans des microrésonateurs en anneau fabriqués en Silicium par l'équipe d'Eric Cassan au C2N, et dont les modes longitudinaux constituent les états fréquences.

Le but de ces activités de recherche est de proposer de nouvelles ressources reproductibles, petites, stables, efficaces et fonctionnants aux longueurs d'ondes télécom pour des application en information quantique.

Dans le chapitre "Activités de recherches", je reviendrai plus en détails sur les différentes activités décrites ici en introduction de ce mémoire.

Curriculum Vitae

Nom :	Bencheikh
Prénom :	Kamel
Né le :	10 Août 1969 à Béjaia (Algérie)
Statut :	Chargé de recherche CN
Adresse :	Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N) 10, Boulevard Thomas Gobert, 91120 Palaiseau
Tél. :	+ 33 (0)1 70 27 04 32
Email :	kamel.bencheikh@c2n.upsaclay.fr

Titres universitaires

Juin 1992 :	Diplôme d'Etudes Supérieures (équivalent Master 1), option : Physique des Rayonnements Université des Sciences et Technologies d'Alger USTHB, Algérie.
Juillet 1993 :	DEA "Fondements et applications des techniques lasers" Université Paris–Nord, Villetaneuse, France.
Décembre 1996 :	Doctorat en Sciences Physiques de l'Université Paris-Nord "Traitement quantique non destructif des signaux optiques" Mention : Très honorable avec félicitations du jury Thèse effectuée au Centre National d'Etudes en Télécommunications (CNET), Laboratoire de Bagneux

Parcours

Fevrier 1997 – Septembre 1999 :	Postdoctorant "Alexander von Humboldt" Groupe du Prof. Jürguen Mlynek, Département de Physique, Université de Constance, Allemagne
Décembre 1996 :	Chargé de recherches CNRS Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, UPR020, puis Centre de Nanosciences et de Nanostructures UMR9001

Activités d'enseignement

— Mars – Juin 1995, 1996 :
Vacataire à l'université d'Evry Val d'Essonne
Nombre d'heures : 24h/an
Travaux dirigés en optique géométrique et ondulatoire. Deuxième année DEUG, option SdM.

— Mai 2002 :
Cours "Information quantique avec des variables continues". Module de l'EDOM
Université Paris-Sud, Orsay
Nombre d'heures : 1h30

— Juin 2002, 2003 et 2004 :
Cours "Optique non linéaire et oscillation paramétrique". Module Nouveaux concepts et nouveaux materiaux
ENST, Paris
Nombre d'heures : 3h

— Depuis 2003 :
TP d'optique et d'optronique
IUT d'Orsay
Nombre d'heures : 24 - 72/an

— Depuis 2016 :
Cours sur la photodétéction
Master MIO (Master en Ingénierie Optique), Université Pierre et Marie Curie, Jussieu
Nombre d'heures : 15h/an

— Depuis 2018 :
TD d'optoélectronique
2ème année DUT Mesures Physiques, IUT d'Orsay, Orsay
Nombre d'heures : 9h/an

Projets

— Participation au projet européen "Quantum information with continuous variables", QUICOV–IST–1999–13071.
— Participation au projet ANR PNANO "Intrication et réseaux de communications quantiques", IRCOQ–ANR–05–NANO–070.
— Participation au PICS Franco-Chinois "Atomes et Photons pour l'information quantique", PICS 3364.
— Porteur du projet CNANO IdF "Lumière lente par interaction non linéaire et cavités à cristaux photoniques", LUMINCP

— Porteur du projet ANR "Cavités à forts facteurs de qualité, guides à modes lents et lumière lente par interaction non linéaire", CALIN ANR–2010–BLAN–1002
— Participation au projet ANR INQCA "Circuits quantiques intégrés basés sur des réseaux de guides non-linéaires".
Référence : ANR-14-CE26-0038.
— Participation au projet Labex Nanosaclay Flagship Phase 2 ICQOQS "On Chip Quantum Optic and Quantum Simulation".
— Porteur du projet PHONAPI "Nanostructures à cristaux photoniques pour les interactions atome-photon".
Appel à Projets 2016, DIM NANO-K, C'NANO IdF.
— Participation au projet UNIQ "Sources nanophotoniques quantiques intégrées non-conventionnelles", ANR-16-CE24-0029
— Participation au projet ANR TRIQUI, "Triplets pour l'information quantique : Génération, détection, étude et manipulation".
Référence : ANR-17-CE24-0041.
— Participation au projet ANR NANOSTRONG, "Combiner atomes froids et guides d'onde à modes lents pour un couplage fort en passage unique".
Référence : ANR-18-CE47-0008.
— Participation au projet WAVEGUIDEQED, "Combing Cold Atoms and Nanoscale Waveguides for Quantum Information Networks".
Appel à projet EML 2018 du DIM SIRTEQ.
— Partenaire du projet européen DAALI, "Disruptive Approaches to Atom-Light Interfaces".
Appel à projet H2020-FETOPEN-2018-2019-2020-01.

Brevets

Titre : Dispositif d'imagerie du champs électromagnétique d'un échantillon. Date de publication : 13 Juillet 2017.

Auteurs : Yannick De Wilde, Léo Greusard, Gilles Tessier, Sylvain Gigan, Samuel Grésillon, Kamel Bencheikh

Numéro de publication internationale : WO 2017/118828 A2

Encadrement

Stages

— Avril - Juin 2000 :
Aleksander Jankovic (Encadrement à 80 %)
Cryptographie quantique à variables continues
Stage de fin d'études de l'école polytechnique, Palaiseau.

— Avril - Juin 2000 :
Franck Edery (Encadrement à 80 %)
Téléportation quantique à variables continues

Stage de DEA 'Lasers, métrologie et communications', université Paris-Nord et CNAM, Villetaneuse.

— Avril - Juin 2002 :
Laure Wawrezinieck (Encadrement : 80 %)
Génération paramétrique à trois photons
Stage de DEA "Lasers et matière", université Paris-Sud, Orsay.

— Avril - Juin 2002 :
François Brygo (Encadrement : 80 %)
Téléportation quantique de variables quantiques
Stage de DEA "Lasers et matière", université Paris-Sud, Orsay.

— Janvier - Juin 2003 :
Alin Marian Apetrei (Encadrement : 80 %)
Spectroscopie d'un cristal dopé aux ions d'Erbium 167
Stage dans le cadre de l'échange SOCRATES/ERASMUS entre l'université Paris-Sud et l'université 'Al.I. Cuza', Iasi (Roumanie).

— Juillet - Aout 2004 :
Vincent Rouget (Encadrement : 80 %)
Spectroscopie de 'Hole-burning' et effets cohérents dans un cristal dopé aux ions d'erbium 167
Stage d'application en vue de la délivrance du diplome d'ingénieur de l'Ecole Centrale de Lyon.

— Aout 2005 :
Pierre Delplace (Encadrement : 80 %)
Quantité d'information dans un protocole de cryptographie quantique à variables continues
Stage Magistère 1ère année M1, UFR de Physique, Université Paris Diderot, Paris.

— Novembre 2006 - Mars 2007 :
Claire Marie Simon et **Olfa Bchir** (Encadrement : 100 %)
Spectroscopie du cristal $^{167}Er^{3+}:Y_2SiO_5$
Stage de 3ème année d'élève ingénieur de l'institut d'Optique, Palaiseau.

— Mars - Mai 2008 :
Audrey Dot (Encadrement : 70 %)
Calcul de correlations quantiques de triplets de photons
Stage de Master 2 Recherche "Physique de la Matière Condensée et du Rayonnement", Institut Néel, Grenoble.

— Mars - Juin 2013 :
Edgar Alonso Rojas Gonzalez (Encadrement : 80 %)
Quantum theory analysis of triple-photon states produced by a $\chi^{(3)}$ *process*

Stage de Master 2 Institut d'Optique Graduate School.

Thèses

— Octobre 1999 - Décembre 2001 :
Thomas Symul (Encadrement 50 % avec Ariel Levenson)
Manipulation du bruit quantique par interaction optiques non linéaires combinées
Doctorat de l'université Pierre et Marie Curie, Paris.

— Janvier 2004 - Juillet 2007 :
Elisa Baldit (Encadrement : 80 % avec Ariel Levenson)
Effets non linéaires géants dans un cristal dopé aux ions d'erbium 167
Doctorat de l'université Paris-Sud, Orsay.

— Septembre 2008 - Décembre 2011 :
Audrey Dot (Encadrement : 50 % avec Benoit Boulanger)
Génération de triplets de photons et étude des corrélations quantiques associées
Doctorat de l'université Joseph Fourier effectuée à Institut Néel, Grenoble.

— Septembre 2009 - Novembre 2012 :
Patricio Grinberg (Encadrement : 80 % avec Ariel Levenson)
lumière lente par interaction non linéaire et cristaux photoniques
Doctorat de l'université Paris-Sud, Orsay.

— Septembre 2011 - Septembre 2014 :
Adrien Borne (Encadrement : 50 % avec Benoit Boulanger)
Triplets de photons : Génération et propriétés quantiques
Doctorat de l'université de Grenoble

— Octobre 2014 - Octobre 2018 :
Ivens Saber (Encadrement : 80 % avec Ariel Levenson)
Design et fabrication de plateformes nanophotoniques pour le couplage fort autour de 800 nm
Doctorat de l'université Paris-Sud, Orsay

— Depuis Novembre 2019 :
Sukanya Mahapatra (Encadrement : 80 % avec Ariel Levenson)
Guides optiques à cristaux photoniques pour le couplage fort atome-photon
Doctorat de l'université Paris-Saclay, Orsay

— Depuis Janvier 2020 :
Da Zhang (Encadrement : 50 % avec le Prof. Cai Yin, université de Xi'an, Chine)
Etudes des propriétés quantiques et d'intrication à trois modes optiques générés par interaction non linéaire

Un an en France dans le cadre du doctorat de l'université Jiantong de Xian, Chine

Post-Doctorants

— Decembre 2011 - Juillet 2013 :
Philippe Hamel (Financement projet ANR CALIN)
Lumière lente dans les guides à cristaux photoniques

— Depuis Octobre 2019 :
Malik Kémiche (Financement projet Labex NANOSACLAY Flagship2 ICQOQS)
Conception de guides optiques à cristaux photoniques pour le couplage fort atome-photon

— Depuis Janvier 2020 :
David Barral (Financement projet ANR TRIQUI)
Propriétés quantiques de triplets de photons

Activités de recherche

L'objectif de ce chapitre est de décrire dans un ordre chronologique mes activités de recherches les plus marquantes depuis mon recrutement au CNRS en Octobre 1999.

1. Effets cohérents dans les cristaux dopés aux ions de terres rares

Projet associé : ANR IRCOQ

Collaborations externes : Ivan Lorgeré, Fabien Bretenaker et Jean-Louis Le Gouët (LAC) ; Philippe Goldner, Olivier Guillot-Noël (ENSCP).

Collaborations C2N : Ariel Levenson, Stéphane Briaudeau, Elisa Baldit (PhD).

Dans cette partie, je décris les résultats importants de mes travaux de recherche qui portent sur les interactions cohérentes dans des cristaux dopés aux ions de terres rares. Après une breve introduction, je rappellerai quelques résultats de spectroscopie qui constituent une première étape, étape préliminaire, en vue d'exciter efficacement les effects cohérents désirés dans ces solides. Deux effets ont été observés : la transparence induite électromagnétique et l'oscillation cohérente de population qui a permis de manipuler la vitesse de propagation de la lumière.

Introduction

L'exhalation des effets non linéaires est au coeur de l'évolution de l'information quantique. L'objectif ultime réside dans la capacité de manipuler avec efficacité les propriétés quantiques de la lumière et de la matière par le biais d'interactions optiques non linéaires comme la generation paramétrique, le mélange à quatre ondes ou encore l'effet Kerr. Ce dernier effet est un ingrédient de base pour la réalisation de portes logiques quantiques. Pour cela, il faut néanmoins que le processus soit efficace et donc hautement non linéaire. Exciter un système atomique en résonance permet de bénéficier d'une réponse non linéaire importante avec des puissances optiques relativement faibles, voire ne contenant que quelques photons. La contre-partie à la forte non linéarité est l'absorption linéaire dont il est cependant possible de s'affranchir à l'aide d'une excitation cohérente, la transparence induite électromagnétiquement (TIE) introduite en 1997 par S.E. Harris [10]. La TIE permet d'annihiler l'absorption d'un système atomique sans pour autant dégrader sa réponse non linéaire lorsqu'il est excité en quasi-résonance. La TIE est ainsi mise à profit pour developper des

effets non linéaires à faible intensité, voire à quelques photons, pour la traitement et la manipulation de l'information quantique. La TIE est un phénomène d'interference quantique qui crée une superposition cohérente lumière-matière [11], ce qui permet par ailleurs de stoker l'état quantique de la lumière dans un état de la matière, ouvrant la voie vers les mémoires quantiques.

Dans ce contexte, les ions de terres rares dans des cristaux constituent des systèmes optiques propices à la réalisation de la TIE. Les structures hyperfines des ions offrent une multitude de transitions optiques en configuration Λ, configuration clé pour la réalisation de la TIE. Les terres rares, ou lanthanides, sont la famille des éléments dont les numéros atomiques vont de 57 à 71. Leur structure électronique est de la forme $[Xe]4f^n5d^16s2$, où n est un entier variant de 1 à 13. Les ions de terres rares triplement ionisés (TR^{3+}) sont obtenus en arrachant les deux électrons de la couche $6s$ et les électrons de la couche $5d$. Les derniers niveaux d'énergie sont ceux occupés par les électrons de la sous-couche $4f$ incomplète et plus localisée que les orbitales pleines $5s$ et $5p$. Cet écrantage confère aux ions TR^{3+} des propriétés spectrales remarquables. Tout d'abord les niveaux d'énergie des ions en matrice cristalline sont très bien décrits par la spectroscopie atomique. Les effets dus à la matrice sont simplement traités comme une perturbation. Cette propriété permet de connaître approximativement les niveaux des ions TR^{3+} quelque soit la matrice utilisée [12]. Ensuite les durées de vie des populations et des cohérences atomiques sont grandes ce qui conduit à des raies d'absorption particulièrement fines pour des dopants dans la matière condensée [13]. Ces deux qualités rapprochent les ions TR^{3+} dopés dans des cristaux des systèmes atomiques. Cela en fait de bons candidats pour la transposition des propriétés des milieux dilués dans la matière condensée.

Parmi les différents ions TR^{3+}, l'Erbium possède probablement la plus forte capacité d'integration car sa transition optique à $1.5\,\mu$m fait de lui un élément compatible avec les dispositifs télécom actuels. C'est donc cet ion que j'ai choisi d'utiliser pour mes activités de recherches. Par ailleurs, j'ai choisi particulièrement l'isotope 167 de l'Er^{3+}, le seul ayant un spin nucléaire non nul, $I = 7/2$, et donc une structure hyperfine résultant de l'interaction entre ce spin nucléaire et le spin électronique effectif[2] ($S = 1/2$). Malheureusement cette structure hyperfine est très mal connue même si l'Erbium est très utilisé dans le domaine des télécoms. Une étape de spectroscopie était donc primordiale avant d'étudier les interactions cohérentes comme la transparence induite.

Spectroscopie du cristal Er^{3+} :Y_2SiO_5

Pour des études d'interactions cohérentes dans des solides dopés aux ions TR^{3+}, il est crucial de choisir judicieusement la quantité d'ions (le dopage) ainsi que la matrice cristalline dans laquelle seront insérés les ions pour que ses éléments constitutifs perturbent le moins ces derniers. L'Orthosilicate d'Yttrium (Y_2SiO_5) a été choisi car ses éléments ont des spins nucléaires soit nuls ou soit très faibles. Cela limite les interactions "perturbatrices" entre les ions Er^{3+} et le cristal, réduisant les processus de déphasage et permettant des largeurs homogènes des transitions optiques proches de la largeur naturel. D'une manière générale,

2. Comme le champ cristallin ne lève que partiellement la dégénérescence du moment total J ($J + 1/2$ niveaux Stark au lieu de $2J + 1$), chaque niveau est un doublet de Kramer de spin effectif $S = 1/2$.

la largeur homogène de la transition optique des ions peut s'écrire comme :

$$\Gamma_h = \Gamma_n + \Gamma_{ii} + \Gamma_p + \Gamma_{im} + \Gamma_{isd}, \tag{1}$$

où $\Gamma_n = 1/2\pi T_1$ est la largeur naturelle, limite ultime que peut atteindre Γ_h, où T_1 est la durée de vie de l'état excité. Γ_{ii} reflète l'interaction entre des ions adjacents. Il est minimisé en choisissant un faible dopage par exemple. La contribution Γ_p est due aux vibrations du réseau cristallin. Le travail à des températures cryogéniques inférieures à 3 K réduit considérablement cette contribution. La contribution Γ_{im} est due au couplage de spin entre les atomes de la matrice et les ions de terres rares. Le choix de la matrice cristalline est crucial pour réduire cette contribution. A ce titre, le Y_2SiO_5 est un hôte de choix pour les terres rares. Des temps de cohérence très longs ont pu y être démontrés à basse température [14,15]. Les moments magnétiques des éléments du Y_2SiO_5 sont soit faibles $-0.137\,\mu$B pour ^{89}Y ($I = 1/2$), soit peu représentés : l'isotope ^{29}Si ($I = 1/2$, $-0.554\,\mu$B) a une abondance naturelle de 4.6 %, et les isotopes magnétiques de l'oxygène ne représentent que 0.04 % des atomes et donc 99.96 % des oxygènes ont un moment magnétique nul. Pour finir, la largeur Γ_{isd} représente la diffusion spectrale correspondant aux fluctuations de la fréquence de résonance causées par les variations locales des champs électriques et magnétiques. La diffusion spectrale est liée à l'excitation optique elle-même. Lorsqu'un ion est excité, son moment électronique est modifié ce qui induit un décalage en fréquence des ions voisins élargissant ainsi la raie homogène. Travailler à faible intensité optique et avec des basses concentrations permet de minimiser ce phénomène [16].

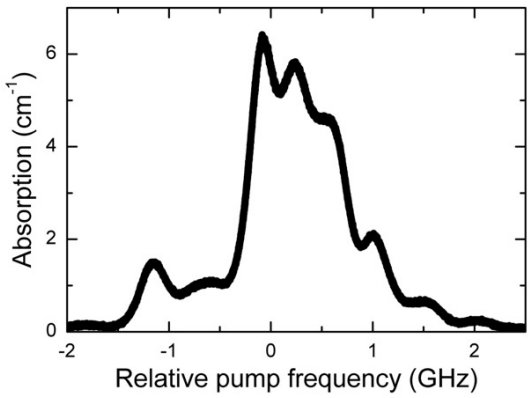

Figure 2 – Absorption linéaire de la transition $^4I_{15/2} \leftrightarrow {}^4I_{13/2}$ dans un cristal $^{167}Er^{3+}$:Y_2SiO_5 dopé à 50 ppm et maintenu à 1.5 K. La longueur du cristal est de 3 mm.

L'insertion des ions $^{167}Er^{3+}$ se fait au détriment de l'Yttrium et la transition optique est celle entre les niveaux $^4I_{15/2}$ et $^4I_{13/2}$. Sa longueur d'onde vaut 1536 nm. Les transitions entre les structures hyperfines des niveaux $^4I_{15/2}$ et $^4I_{13/2}$ sont caractérisés par de fines résonances optiques, de largeurs de l'ordre du kHz. Néanmoins, l'élargissement inhomogène ($\sim$ GHz) induite par le champ cristallin empêche l'observation directe de ces raies fines comme le montre la Fig. 2 représentant le spectre d'absorption linéaire de la transition $^4I_{15/2} \leftrightarrow {}^4I_{13/2}$. Afin de les étudier, nous avons opté pour la spectroscopie de saturation et la spectroscopie de résonance paramagnétique électronique.

Spectroscopie d'absorption saturée

La spectroscopie d'absorption saturée (spectral hole burning spectroscopy) est une technique qui permet de s'affranchir de la largeur inhomogène. Un champ pompe de forte intensité et de longueur d'onde fixe sature l'absorption d'une classe d'ions dans la largeur inhomogène : les ions dont la transition optique coincide exactement avec la longueur d'onde de la pompe. Un second champ de faible intensité dit sonde, de longueur d'onde accordable permet de sonder l'absorption sur toute la largeur inhomogène et donc les ions d'autres classes. Dès lors, une structure de trous (réduction de l'absorption) et d'anti-trous (augmentation de l'absorption) apparaît dans la spectre d'absorption inhomogène. Les intervalles spectraux entre les trous dépendent des écarts en fréquence entre les sous niveaux hyperfins de l'état excité et les intervalles entre les anti-trous dépendent des écarts en fréquence entre les sous niveaux hyperfins de l'état fondamental et de l'état excité.

Nous avons utilisé cette technique de spectroscopie de saturation afin de mettre en évidence la structure hyperfine du Er^{3+} :Y_2SiO_5. Chaque niveau électronique se compose de 16 sous niveaux hyperfins à cause du moment nucléaire $I = 7/2$ et de la faible symétrie du cristal Y_2SiO_5. En conséquence, un grand nombre de trous et d'anti-trous apparaissent dans les spectres d'absorption que nous avons enregistrés et l'identification des niveaux hyperfins s'est avérée être une opération complexe sans l'aide de la spectroscopie de résonance paramagnétique électronique. La spectroscopie par saturation d'absorption est d'autant plus difficile que la largeur inhomogène est du même ordre de grandeur que les éclatements hyperfins, certains sous niveaux sont peu ou pas excités par le faisceau pompe. Ceci se traduit dans le spectre par l'apparition de structures de trous et d'anti-trous différentes en fonction de la longueur d'onde de la pompe, rendant encore plus compliquée l'interprétation des spectres pour l'identification des niveaux hyperfins.

Résonance paramagnétique électronique

En résonance paramagnétique électronique (RPE), le cristal $^{167}Er^{3+}$:Y_2SiO_5 est excité par un champ magnétique RF oscillant à la fréquence de 9.4 GHz et un champ magnétique statique. La variation de l'amplitude du champ magnétique statique modifie l'écart spectral entre les sous niveaux hyperfins et lorsque cet écart coïncide avec la fréquence du champ magnétique oscillant, un photon RF est absorbé par le cristal, faisant passé l'électron d'un niveau hyperfin vers un autre. C'est cette absorption détectée par l'appareillage qui constitue le signal de RPE. En spectroscopie de RPE, seul la structure hyperfine de l'état fondamental $^4I_{15/2}$ est caractérisée puisqu'aucun niveau hyperfin de l'état excité n'est peuplé par une excitation optique. La structure hyperfine est décrite par l'Hamiltonien

$$H = \beta\, S \cdot g \cdot B + I \cdot A \cdot S + I \cdot P \cdot I - \beta_N g_N I \cdot B, \tag{2}$$

où le premier terme rend compte de l'effet Zeeman électronique, le second terme décrit le couplage hyperfin entre le spin électronique ($S = 1/2$) et le spin nucléaire ($I = 7/2$) de l'erbium 167, le troisième terme est l'interaction quadrupolaire, et le dernier terme rend compte de l'effet Zeeman nucléaire. En collaboration avec Olivier Guillot-Noël et Philippe Goldner de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie Paris (ENSCP), nous avons identifié par spectroscopie RPE la structure hyperfine de niveau fondamental $^4I_{15/2}$ [17]. Ceci est

obtenu par la mesure systématique des spectres d'absorption des photons RF pour différentes orientations du cristal par rapport à la direction du champ magnétique statique. Les mesures nous ont permis de déterminer les tenseurs g, A, P, et la détermination des 16 niveaux hyperfins du niveau fondamental $^4I_{15/2}$. Ces résultats sont en accord avec certains anti-trous obtenus par spectroscopie de saturation d'absorption. Les autres anti-trous correspondent à des superpositions linéaires des éclatement hyperfins du niveau fondamental $^4I_{15/2}$ et de l'état excité $^4I_{13/2}$, et ne peuvent donc avoir d'équivalent au spectroscopie RPE, le cristal n'étant pas excité optiquement.

Transparence induite dans le Er^{3+} :Y_2SiO_5

La transparence induite est un phénomène d'interférence quantique [18] qu'on observe généralement dans un système atomique comme celui représenté en Fig. 3 ayant 3 niveaux d'énergie en configuration Λ. Dans cette configuration, l'absorption d'un faible champ sonde en résonance avec la transition atomique $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ est supprimée en appliquant un second champ pompe en résonance avec la transition $|b\rangle \leftrightarrow |a\rangle$. La figure 4 montre l'evolution de l'absorption du champ sonde en fonction du désaccord $\delta = \omega_{sonde} - \omega_{bc}$ normalisé à la largeur homogène Γ_{hom}, pour une pompe en resonance avec la transition $|b\rangle \leftrightarrow |a\rangle$, et lorsque celle-ci est présente (en rouge) ou absente (en noir). La forte dispersion associée à l'étroite résonance est à l'origine du ralentissement de la lumière et de son stockage dans les atomes comme cela a été démontré en 2008 par Appel *et al.* [3] et Honda *et al.* [2].

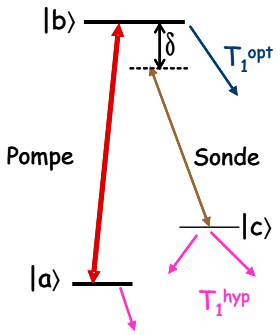

Figure 3 – Système atomique en configuration Λ

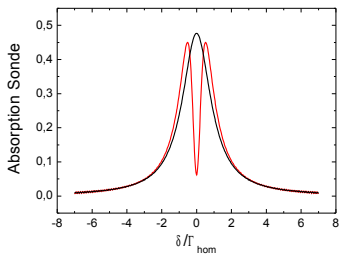

Figure 4 – Absorption de la sonde en présence (rouge) / absence (noir) de la pompe.

Le recoupement des résultats des expériences d'absorption saturée et des résultats de résonance paramagnétique électronique ont permis d'identifier deux systèmes en Λ parmi les nombreuses possibilités offertes par les niveaux hyperfins des niveaux $^4I_{15/2}$ et $^4I_{13/2}$. La figure 5 représente les deux systèmes atomiques. Ils sont constitués d'un niveau hyperfin de l'état excité $^4I_{13/2}$ et de deux niveaux hyperfins de l'état fondamental $^4I_{15/2}$. Pour le système 1, l'écart en fréquence entre les niveaux hyperfins est de 880 MHz. Ce système en Λ existe lorsque la pompe pompe esr accordée au point G dans le spectre d'absorption du Er^{3+} :Y_2SiO_5. Pour le second système, l'écart en fréquence entre les niveaux hyperfins est de 740 MHz et n'existe que lorsque la fréquence est au point A dans le spectre.

Pour la démonstration expérimentale de la TIE, j'ai utilisé un cristal dopé avec 0.005 at. % d'ions erbium 167. Le cristal est maintenu à très basse température (~ 1.5 K) dans un cryostat à Hélium liquide afin de réduire la largeur homogène de la transition optique en

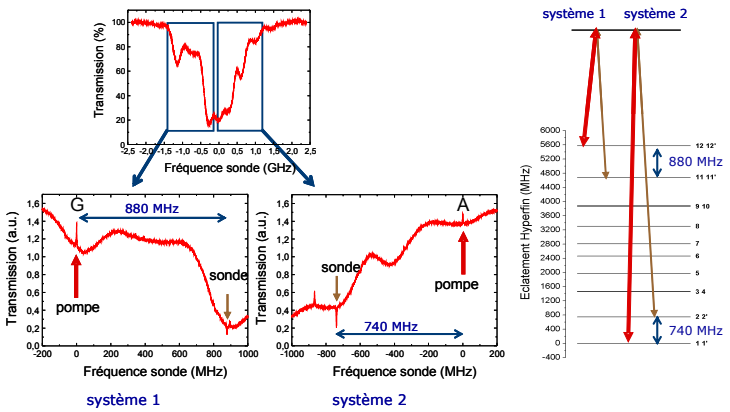

FIGURE 5 – Transmission de la sonde en fonction de la fréquence lorsque la fréquence pompe est positionnée en G (système 1 en Λ) ou en A (système 2 en Λ). Les résonances étroites apparaissant à la fréquence sonde indiquées par les flèches montrent une augmentation de l'absorption dû au pompage optique.

dessous du MHz. L'élargissement inhomogène Γ_{inh} dû au champ statique cristallin est de l'ordre de 1.3 GHz.

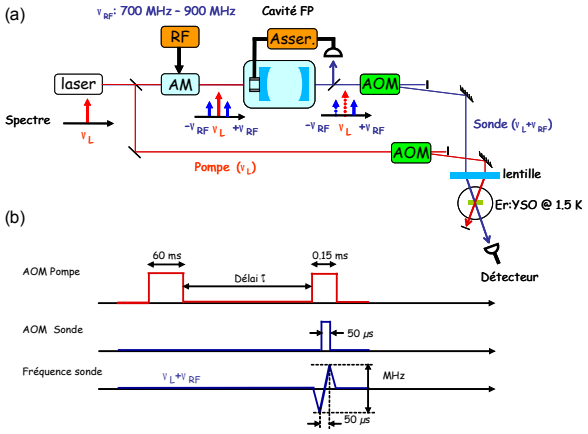

FIGURE 6 – (a) : Schéma du dispositif experimental pour l'observation de la TIE dans le cristal ErYSO. (b) : Séquence temporelle des impulsions pompe et sonde.

La figure 6(a) représente le schéma du dispositif experimental que nous avons utilisé pour l'observation de la TIE dans les deux systèmes en Λ mis en evidence par spectroscopie de saturation et de résonance paramagnétique électronique. La source laser est une source continue accordable émettant à 1536 nm (longueur d'onde de la transition $^4I_{15/2} \leftrightarrow {}^4I_{13/2}$) et dont la largeur spectrale vaut 2 kHz. Pour la démonstration expérimentale, il faut générer un faisceau pompe et un faisceau sonde dont les longueurs d'onde sont décalées l'une par rapport à l'autre de 880 MHz ou de 740 MHz. Ceci est obtenu en modulant sinusoïdalement à l'aide d'un interféromètre Mach-Zendher fibré (AM, dans la figure 6(a)) à la fréquence $\nu_{RF} = 880$ MHz (ou 740 MHz) une partie de l'intensité laser. On crée ainsi deux composantes spectrales à $\pm\nu_{RF}$ autour de la porteuse ν_L du laser. Afin de ne garder que la composante $\nu_L + \nu_{RF}$ correspondant à la fréquence du faisceau sonde, le signal modulé est filtré à l'aide

d'une cavité Fabry-Pérot ayant une finesse de l'ordre de 200 et un intervalle spectral libre de 3 GHz. La résonance du Fabry-Pérot est activement stabilisée à $\nu_L + \nu_{RF}$ à l'aide d'un asservissement contrôlant une cale piézo-électrique sur laquelle est monté un des miroirs de la cavité Fabry-Pérot. L'accordabilité de la fréquence sonde se fait soit en changeant la fréquence de modulation ν_{RF} ou bien bien en changement la fréquence RF du pilote de l'acousto-optique AOM sonde. Les acousto-optiques sur les chemins de la sonde et de la pompe servent également à controller les durées de celles-ci. La figure 6(b) montre la séquence temporelle des différentes impulsions. Une première impulsion pompe ayant une durée de 60 ms est d'abord appliquée au système. Elle a pour rôle de transférer un partie de la population du niveau hyperfin pompe $|a\rangle$ vers le niveau hyperfin sonde $|c\rangle$. Après un délai τ l'impulsion pompe et l'impulsion sonde sont appliquées simultanément afin d'observer l'effet TIE. Tandis que la fréquence pompe est maintenue fixe (au point A ou G dans spectre), la fréquence sonde est balayée de quelques dizaines de MHz autour de la résonance.

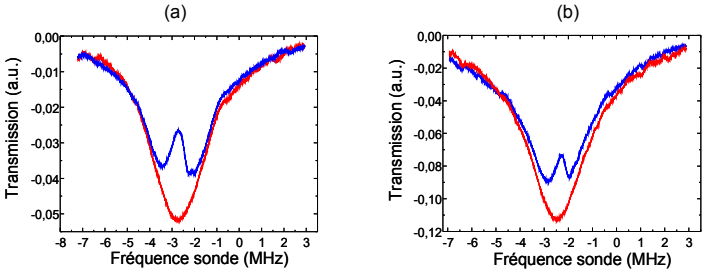

Figure 7 – Transmission de la sonde en fonction du desaccord en fréquence par rapport à la résonance lorsque la deuxième impulsion pompe est présente (courbe bleue) ou absente (courbe rouge), et pour le système en Λ avec écart en fréquence de 880 MHz (a) ou de 740 MHz (b) entre les niveaux hyperins.

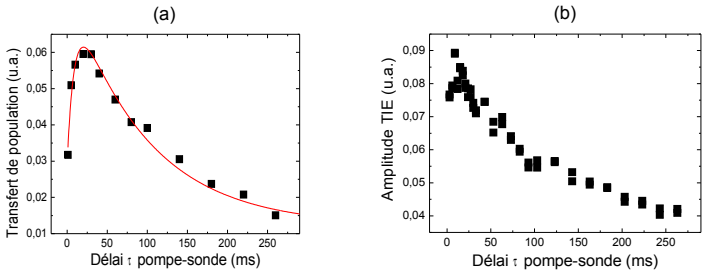

Figure 8 – (a) : Amplitude de transfert de population du niveau hyperfin $|a\rangle$ vers le niveau hyperfin $|c\rangle$ en fonction du délai τ entre la première impulsion pompe et la seconde. La courbe en rouge est un ajustement théorique qui dépend des durées de vie T_1^{opt} et T_1^{hyp}. (b) : Evolution de l'amplitude du pic de la TIE en fonction du délai τ.

La figure 7 représente le spectre de transmission de la sonde lorsque la deuxième impulsion pompe est présente (courbe bleue) ou absente (courbe rouge). La courbe rouge indique une augmentation de l'absorption par rapport à l'absorption linéaire de la sonde due au transfert partiel par pompage optique de la population du niveau hyperfin $|a\rangle$ excité par la première impulsion pompe vers le niveau hyperfin sonde $|c\rangle$. La figure 8(a) indique l'evolution de ce transfert en fonction du délai τ entre la première impulsion pompe et la sonde. Le taux de

transfert optimal est obtenu pour $\tau \simeq 28\,\mathrm{ms}$ et dépend de la durée de vie $T_1^{opt} \simeq 10\,\mathrm{ms}$ de l'état excité et de la durée de vie $T_1^{hyp} \simeq 100\,\mathrm{ms}$ des niveau hyperfins. Notons que ce transfert n'est pas efficace à 100 % car les ions excités par la pompe peuvent relaxer vers des niveaux hypefins autres que $|c\rangle$. La spectroscopie de saturation et de résonance paramagnétique électronique ont montré que l'état fondamental $^4\mathrm{I}_{15/2}$ et l'état excité $^4\mathrm{I}_{13/2}$ ont chacun 16 niveaux hyerfins. Lorsque la deuxième impulsion pompe est appliquée simultanemment avec la sonde, un pic de TIE apparait (courbe bleue). La figure 8(b) montre l'évolution de ce pic en fonction du délai τ. L'évolution de l'amplitude du pic TIE suit l'évolution du transfert de population montrant que l'efficacité de la TIE dépend du nombre initial d'ions se trouvant dans le niveau hyperfin $|c\rangle$. Le cas idéal de la TIE s'obtient lorsque tous les ions se trouvent dans le niveau hyperfin $|c\rangle$. L'efficacité de la TIE dépend également du temps de coherence T_2^{hyp} entre les niveaux hyperfins. Plus ce temps de coherence est long, plus la pic de TIE est étroit et plus la transparence tend vers l'unité.

Ces résultats montrent que la TIE dans le ErYSO est possible, cela dit elle reste de faible efficacité. Tout d'abord, l'amplitude de la transparence est faible et n'atteint pas les 100 % escomptés. Cela est dû à la présence d'un nombre élevé de niveaux hyperfins qui constituent des voies supplémentaires de relaxation des ions excités vers le niveau fondamental. Ces niveaux sont par ailleurs tous peuplés même à très basse température (1.5 K). Afin d'augmenter l'efficacité de la TIE, il faut mieux preparer les systèmes en Λ par des processus de transfert de population incoherent (pompage optique) ou cohérent (STIRAP) vers l'état $|c\rangle$. La faible efficacité de la transparence est également due au temps de cohérence hyperfine qui reste court et qui vaut quelques μs.

Afin d'optimiser la transparence induite, il est nécessaire donc de mieux preparer les deux systèmes en Λ en eliminant par pompage optique les fuites de populations vers les niveaux hyperfins annexes et en augmentant le temps de coherence T_2^{hyp} en applicant par exemple un champ magnétique afin de réduire les fluctuations de spins qui réduisent le temps de cohérence.

Ralentissement de la lumière

Dans les années 2000, réduire la vitesse de la lumière très en dessous de la célérité c, constituait un enjeu majeur pour la photonique, au delà du fait étrange de voir évoluer la lumière lentement, comme dans un ralenti de match de foot pour mieux saisir l'action du but inscrit. Le contrôle actif ou passif de la vitesse de groupe permettrait de mettre en place de nouvelles fonctions optiques de traitement du signal, telles que les mémoire tampons, les retards ajustables, ou le recentrage d'impulsions dans une fenêtre temporelle ou encore et de renforcer des interactions optiques non linéaires ou les interactions lumière-matière. Pour comprendre comment manipuler la vitesse de la lumière, il est nécessaire de revenir vers quelques rappels sur celle-ci.

La vitesse de la lumière dans le vide comme nous la connaissons aujourd'hui est une constante universelle, fixée depuis 1983 à $c = 299\,792\,458\,\mathrm{m/s}$. Depuis le 19ème siècle, différentes mesures par différentes méthodes ont été réalisées pour déterminer la vitesse de la lumière. Mais ce n'est qu'en 1972 qu'un réel progrès a été fait quand à la précision avec laquelle c a été mesurée, à travers une experience reposant pour la première fois sur l'utilisation d'un laser [19]. Bien avant cela, une des premières tentatives de mesures de la vitesse

de la lumière a été faite en 1848 par Fizeau. Elle consistait dans la mesure du temps de vol d'une impulsion lumineuse, créée par une roue dentée en rotation, faisant un allé-retour entre deux positions géographiques séparées de 8.6 km. En fait, Fuzeau ne mesurait pas la vitesse de la lumière correspondant à la vitesse de phase $v_p = c/n$ mais la vitesse de groupe, correspondant à la vitesse à laquelle se propage un paquet d'onde lumineux, définie comme

$$v_g = \frac{c}{n(\omega_0) + \omega_0 \frac{dn}{d\omega}}, \tag{3}$$

où n est l'indice du milieu dans le quel se propage la lumière et ω_0 est la fréquence optique centrale de l'impulsion. Comme le montre l'Eq. (3), la vitesse de groupe dépend de la dispersion de l'indice de réfraction du milieu dans lequel l'impulsion évolue. Dans le vide, l'indice valant 1 et la dispersion étant négligeable, vitesse de groupe, vitesse de phase et célérité se confondent. Tel n'est pas le cas lorsque la lumière se propage dans un milieu fortement dispersif. Le terme dispersif du dénominateur de l'Equ. 3 peut devenir prépondérant par rapport à $n(\omega_0)$ seul, ce qui contribue à réduire considérablement la vitesse de groupe devant la célérité. En façonnant cette dispersion, il devient possible de modifier à volonté la vitesse de groupe. Selon le signe de la dispersion, v_g peut devenir très petite, voire même plus grande que c, ou éventuellement être négative. L'interrogation à ce stade est de savoir comment manipuler la dispersion. Selon les relations de Kramers-Krönig, il est possible de la modifier en manipulant l'absorption ou le gain d'un milieu. Ouvrir par exemple une fenêtre de transparence étroite dans la raie d'absorption d'un système atome induit un forte dispersion positif de l'indice de réfraction, ce qui permet d'obtenir des vitesses de groupe v_g très inférieures à la célérité. Pour atteindre des réductions extrêmes, les approches choisies reposent sur l'utilisation de processus optique non linéaires et cohérents plus sophistiqués que la simple absorption saturée, comme l'oscillation cohérente de population [20] ou la transparence induite électromagnétiquement [21].

Oscillation cohérente de population : OCP

Les premières démonstrations de ralentissement de la lumière [21–25] ont été réalisées en utilisant la transparence induite électromagnétiquement [10]. La dispersion de l'indice induite dépend inversement du temps de coherence de la transition entre le niveaux fondamentaux du système atomique en Λ, configuration de base pour observer la TIE. L'oscillation cohérente de population (OCP) est un autre phénomène coherent qui permet également de produire une forte dispersion de l'indice [26, 27]. L'OCP est plus facile à mettre en oeuvre que la TIE car elle ne nécessite qu'un système atomique à deux niveaux.

C'est ce phénomène que j'ai mis en oeuvre pour le ralentissement de la lumière dans le cristal dopé aux ions Er^{3+} et dans des structures semi-conductrices III-V à cristal photonique contenant des puits quantiques comme on le verra par la suite. L'une des premières démonstrations de ralentissement de la lumière par effet OCP a été réalisée dans un crystal de Ruby par M.S. Bigelow *et al.* [20]. Une vitesse de groupe de 57 m/s a été obtenue en ouvrant dans le spectre d'absorption une fenêtre spectrale ayant une largeur de 36 Hz. L'effet OCP a été également mis en oeuvre dans des systèmes solides se comportant comme des systèmes atomiques. Il s'agit de structures semi-conductrices à puits quantiques dans lesquelles la vitesse de la lumière a été réduite jusqu'à 9600 m/s [28].

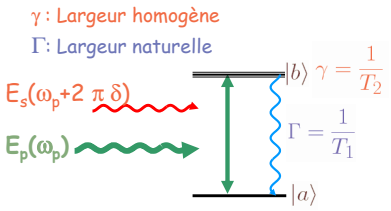

FIGURE 9 – Système atomique à deux niveaux et excitation pour l'oscillation cohérente de population.

Pour comprendre l'OCP, il faut considerer des systèmes atomiques à deux niveaux d'énergie caractérisés par leur durée de vie T_1 et un temps de cohérence $T_2 < T_1$. Lorsque cet ensemble d'atomes est excité simultanément par deux champs électromagnétiques oscillant respectivement à ω (pompe) et à $\omega + 2\pi\delta$ (sonde), comme cela est representé sur la Fig. 9, la difference de populations entre le niveau excité et le niveau fondamental oscillent périodiquement à la fréquence δ pourvu que $\delta < 1/T_1$. L'absorption (voir Fig. 10) de la sonde se trouve alors réduite dans une fenêtre spectrale aussi étroite que $1/T_1$.

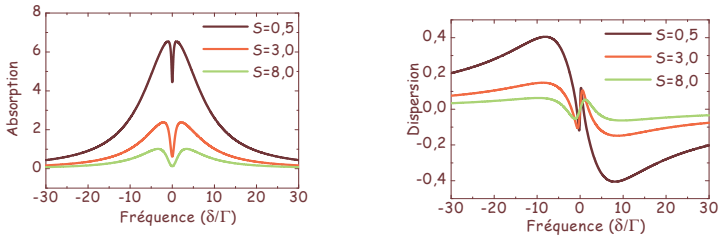

FIGURE 10 – Absorption et dispersion de la sonde pour différentes valeurs du paramètre S en fonction de la fréquence δ normalisée à la largeur naturelle Γ de la transition.

Il faut veiller ici à ne pas confondre l'OCP avec un quelconque effet de saturation. L'OCP ouvre une fenêtre de transparence de largeur $\simeq 1/T_1$ dans la largeur homogène $\simeq 1/T_2$ de la transition. La saturation de l'absorption ouvre quand à elle une fenêtre de transparence aussi large que la largeur homogène de la transition atomique ou bien aussi large que le spectre de la source laser excitatrice dans un système ayant un élargissement inhomogène. Le calcul théorique [27] montre qu'une impulsion se propageant dans un milieu d'absorption $\alpha_\circ$ et de longueur L avec une vitesse de groupe v_g, aura un retard temporel $\tau(\delta)$ donné par

$$\tau(\delta) = \frac{\alpha_\circ T_1 L}{2} \frac{S}{1+S} \frac{1}{(2\pi\delta T_1)^2 + (1+S)^2}, \tag{4}$$

où S est le paramètre de saturation de la transition. La largeur à mi-hauteur Γ_{ocp} de la fenêtre de transparence induite par l'oscillation cohérente de population est donnée par

$$\Gamma_{\text{ocp}} = \frac{1}{2\pi T_1}(1+S). \tag{5}$$

Dans les expériences de ralentissement de la lumière, il s'agit de déterminer la vitesse de groupe v_g du champ sonde se propageant dans le cristal de longueur L ou, ce qui est tout à fait équivalent, à déduire le délai $\tau(\delta)$ qu'a mis le champ sonde pour ce propager dans le cristal, puisque $v_g = L/\tau(\delta)$.

Lumière lente dans un cristal dopé aux ions Erbium

Pour la démonstration expérimentale, j'a utilisé le même cristal utilsé pour la démonstration de la transparence induire. Il s'agit du $^{167}Er^{3+}$:Y_2SiO_5 dopé avec 0.005 at. % d'ions erbium 167. Le système atomique à deux niveaux est constitué par le niveau fondamental $^4I_{15/2}$ et le niveau excité $^4I_{13/2}$ des ions erbium, correspondant à une longueur d'onde λ =1536 nm. Le cristal est maintenu à très basse température ($\sim$ 1.5 K) dans un cryostat à Hélium liquide afin de réduire la largeur homogène. Utilisant une technique de spectroscopie de saturation, nous avons mesuré une durée de vie T_1 =8 ms de l'état excité. La largeur homogène Γ_h de la transition étant plus petite que la largeur inhomogène, celle-ci est déduite en mesurant le temps de cohérence $T_2 = 1/(\pi\Gamma_h)$ par spectroscopie d'écho de photons. Nous trouvons un temps de cohérence de l'ordre de 3 μs à 1.5 K.

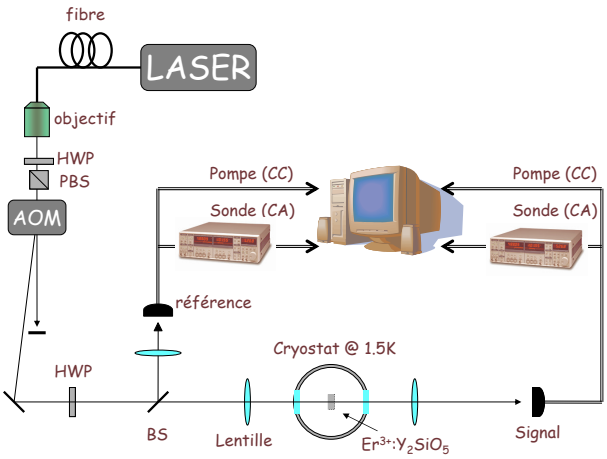

Figure 11 – Schéma du dispositif expérimental pour le ralentissement de la lumière. HWP : lame demi-onde ; PBS : polariseur ; BS : lame séparatrice ; CC : composante continue ; CA : composante alternative.

La figure 11 représente le schéma du dispositif expérimental utilisé. La source laser que nous avons utilisée est une source continue accordable émettant à 1536 nm et dont la largeur spectrale vaut 2 kHz. La lame demi-onde (HWP) et le polariseur (PBS) permettent de contrôler l'intensité du laser.

Comme le montre l'équation (5), la largeur spectrale de la fenêtre de transparence associée à la durée de vie T_1 =8 ms est de l'ordre de la dizaine de Hertz. Dans ce cas, la fréquence du champ sonde est très proche de celle du champs pompe et les fluctuations relatives en fréquence ne nous permettent pas d'observer l'effet escompté si on utilise deux

sources lasers indépendantes même très stables. Afin de contourner ce problème, la pompe et la sonde sont générées à partir d'une même source laser dont l'intensité est modulée à la fréquence δ suivant la fonction de modulation $f(\delta) = 1 + m\cos(2\pi\delta t)$, où $m < 1$ désigne la profondeur de modulation. En effet, l'intensité moyenne du laser joue le rôle de la pompe et les composantes latérales apparaissant dans le spectre de Fourier à $\pm\delta$ jouent le rôle de la sonde. En pilotant le puissance RF du modulateur acousto-optique (AOM) avec la fonction $f(\delta)$, une modulation partielle ($\sim 6\,\%$) est imprégnée à l'intensité du laser. Après l'AOM, le faisceau laser est séparé en deux : un premier faisceau principal passant par le cristal dans le cryostat et un second faisceau servant de référence pour la mesure du retard et de la variation de l'amplitude du signal passant par le cristal. Le faisceau principal est focalisé (waist $= 540\,\mu$m) à l'aide d'une lentille de focale $f = 250$ mm dans le cristal de 3 mm de long. Par la suite le faisceau principal et le faisceau référence sont détectés à l'aide de photodiodes InGaAs. Les composantes alternatives (CA) des photo-courants sont démodulées à l'aide de détections synchrones dont les sorties phase et amplitude sont enregistrées, simultanément avec les composantes continues (CC), sur un ordinateur après échantillonnage et moyenne sur 10000 points. Le retard $\tau(\delta)$ du signal est déduit à partir des phases ϕ_m et ϕ_r du faisceau principal et du faisceau référence données par les détections synchrones suivant la relation $\tau = (\phi_m - \phi_r)/2\pi\delta$.

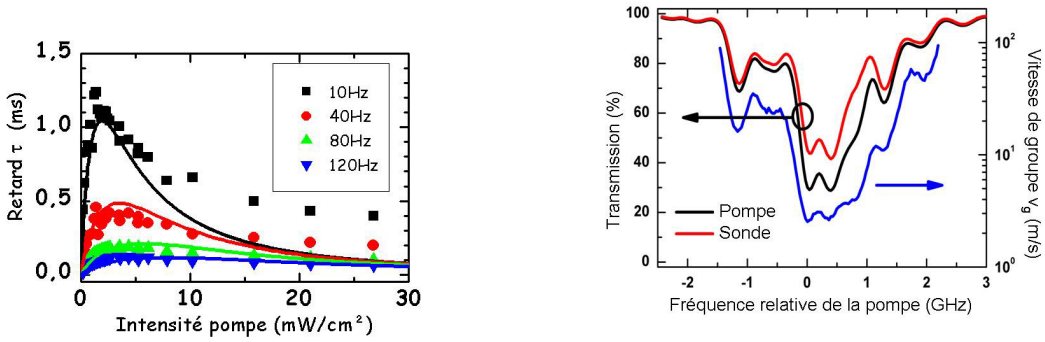

FIGURE 12 – (a) Délai temporel de la sonde dans le cristal Er^{3+} :Y_2SiO_5 en fonction de l'intensité de la pompe pour différentes fréquences de modulation. (b) Délai temporel de la sonde (bleu) dans le cristal Er^{3+} :Y_2SiO_5 en fonction de la fréquence de la pompe pour un désaccord pompe - sonde $\delta = 10$ Hz. L'intensité de la pompe vaut $S = 1/2$. Les courbes rouge et noire représentent respectivement la transmission de la sonde et de la pompe.

La figure 12 montre les délais $\tau(\delta)$ mesurés pour différentes fréquences de modulation δ en fonction de l'intensité pompe. La longueur d'onde de la pompe est accordée au maximum de l'absorption inhomogène. Les lignes continues sont les courbes théoriques obtenues à partir de l'équation (4) pour $T_1 = 8$ ms et $L = 3$ mm. Le coefficient d'absorption non saturée au maximum du profil inhomogène $\alpha_\circ = 6.5\,\mathrm{cm}^{-1}$ est déterminé en mesurant par ailleurs l'absorption linéaire d'un un champ électromagnétique de faible intensité par le cristal en fonction de sa longueur d'onde, en prenant soin de l'accorder sur quelques GHz ($> \Gamma_{inh}$) suffisamment rapidement (< 5 ms) pour éviter les effets de saturation. La figure 12 montre que le délai tend vers zéro lorsque l'intensité de la pompe est faible ($S \ll 1$) car le nombre

d'ions excités est faible pour induire un effet d'oscillation cohérente de population appréciable. Le délai tend également vers zéro pour les fortes intensités ($S \gg 1$) à cause des effets de saturation : le nombre d'ions contribuant à l'effet d'oscillation cohérente est moindre et le trou spectral associé à l'effet OCP s'élargit se qui engendre une faible dispersion de l'indice de réfraction. Un délai maximal τ_{max} est obtenu pour une intensité pompe optimale indépendante de l'absorption non saturée $\alpha_\circ$. L'intensité est telle que $S \simeq 1/2$ dans l'approximation des basses fréquences $\delta \ll 1/T_1$. Expérimentalement, on mesure un délai maximal $\tau_{max}^{exp} = 1.1 \pm 0.1\,\mathrm{ms}$ pour $\delta = 10\,\mathrm{Hz}$, pour une puissance de la pompe de $12\,\mu\mathrm{W}$ mesurée devant le cryostat, correspondant à une intensité de $2.1\,\mathrm{mW/cm^2}$. Cette intensité est six ordres de grandeur plus faible que les intensités mises en jeu pour le ralentissement de la lumière dans un cristal de Ruby [20] et est comparable aux intensités de ralentissement par TIE dans un condensat de Bose-Einstein [21]. La valeur expérimentale que nous obtenons est en bon accord avec le délai théorique $\tau_{max}^{th} = 1.04\,\mathrm{ms}$ déduit de la relation (4). La vitesse de groupe associée vaut $v_g = 2.7\,\mathrm{m/s}$.

Un des points essentiels que nous avons étudié est l'exploration et l'exploitation expérimentale de la dépendance du ralentissement de la lumière en fonction du coefficient d'absorption. En effet, le cristal que nous utilisons présente un élargissement inhomogène. En accordant le fréquence de la pompe sur ce profil d'absorption inhomogène, nous somme capable d'interroger des concentrations différents d'ions d'erbium et donc des absorptions différentes. La figure 12(b) montre la vitesse de groupe mesurée en fonction de la fréquence de la pompe relativement à la fréquence de la pompe au maximum de l'absorption. La figure 12 montre également la transmission de la sonde et de la pompe. La fréquence de la sonde est décalée de $\delta = 10\,\mathrm{Hz}$ par rapport à la fréquence de la pompe. L'évolution de la vitesse de groupe, similaire à l'évolution de la transmission, montre clairement une dépendance de la vitesse de groupe en fonction de l'absorption des ions erbium dans le cristal. Néanmoins, cette dépendance n'est pas inversement proportionnelle comme le suggère la relation (4). Cela est dû à la présence de la largeur inhomogène. D'un point de vue pratique, la figure 12 indique clairement que la largeur inhomogène constitue un paramètre additionnel qui permet la manipulation de la vitesse de groupe et de la transmission dans le cristal. En effet, on peut varier la vitesse de groupe de $3\,\mathrm{m/s}$ à $100\,\mathrm{m/s}$ en changeant la longueur d'onde de la pompe le long du profil inhomogène de l'absorption. Même si le ralentissement le plus élevé ($v_g = 2.7\,\mathrm{m/s}$) est obtenu pour une transmission de $40\,\%$ de la sonde, un ralentissement toujours élevé est encore possible pour des absorptions moins importantes. En effet, lorsque la fréquence de la pompe est à $2\,\mathrm{GHz}$ (figure 12), une vitesse de groupe $v_g = 58\,\mathrm{m/s}$ est mesurée pour une transmission de la sonde de l'ordre de $88\,\%$.

Lumière lente dans une fibre dopé aux ions Erbium

La basse température à laquelle le cristal ErYSO a été maintenu dans nos expériences ne constitue pas une condition nécessaire pour le ralentissement de la lumière. En effet, l'oscillation cohérente de population s'observe aisément dans un milieu transparent pourvu que celui-ci soit constitué de systèmes atomiques à deux niveaux, et pour peu que la condition $T_2 \ll T_1$ soit vérifiée.

Cette condition est notamment vérifiée à température ambiante pour les ions erbium dopés dans des fibres optiques en verre, où $T_1 \simeq 10\,\mathrm{ms}$ et $T_2 \ll 3\,\mu\mathrm{s}$. Nous avons démontré

une propagation lente de la lumière par effet d'oscillation cohérente de population dans deux type de fibres optiques (voir Fig. 13) : une fibre monomode dont le coeur est dopé avec 400 ppm d'ions erbium naturel et une fibre dont le dopage en erbium (600 ppm) s'est fait en périphérie en anneau autour du coeur de la fibre. Dans cette seconde fibre, la lumière ralentie interagit avec les ions erbium par l'extension spatiale de son mode en dehors du coeur de la fibre.

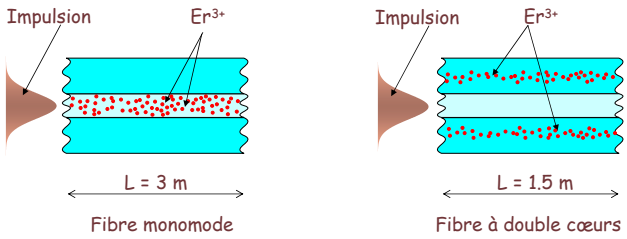

FIGURE 13 – Interaction directe dans la fibre monomode et indirecte dans la fibre à double coeurs.

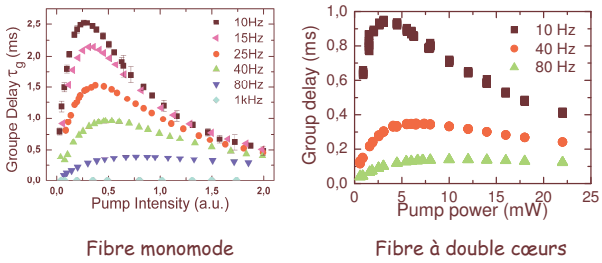

FIGURE 14 – Retard accumulé par la sonde se propageant dans une fibre monomode ou dans une fibre à double coeurs.

Le dispositif expérimental utilisé pour la mesure du retard accumulé par la lumière est identique à celui décrit au paragraphe précedent. Un objectif de microscope est utilisé pour coupler le lumière dans les fibres. La figure 14 montre les résultats obtenus. On peut en déduire un vitesse de groupe de 1200 m/s pour la fibre monomode et une vitesse de groupe

de l'ordre de 1500 m/s pour la fibre à double coeurs.

Nous avons également démontré que la propagation ultra lente d'impulsions lumineuses est possible à l'aide de l'effet d'oscillation cohérente de population pourvu que la durée de l'impulsion soit plus longue que la durée de vie T_1 du système [3]. Nous avons en effet pu ralentir des impulsions de durée de l'ordre de 10 ms dans le Er :YSO et dans les fibres avec des performances comparables à celles obtenues avec une sonde continue.

2. Lumière lente dans les nanocavités à cristal photonique et les microsphères.

Projets associés : CALIN (ANR), LUMINCP (CNANO IdF)

Collaborations externes : Yannick Dumeige (FOTON) ; Yannick De Wilde (Institut Langevin) ; Christophe Sauvan, Philippe Lalanne (IOGS)

Collaborations C2N : Ariel Levenson, Alejandro Yacomotti, Fabrice Raineri, Isabelle Sagnes, Gregoire Baudoin, Ingénieurs salles blanches C2N, Patricio Grinberg (PhD), Philippe Hamel (Post-Doc)

Dans cette partie est décrite mon activité sur l'association des deux approches de manipulation de la vitesse de la lumière : l'ingénierie par l'optique non linéaire cohérente de la vitesse de groupe et l'ingénierie géométrique des modes optiques dans des micro/nano-résonateurs à forts coefficients de qualité (Q) ou de guides d'onde à modes lents.

Augmenter la durée de vie des photons dans un cavité et en même temps réduire le volume du mode optique occupé par ces photons est un point crucial en photonique afin d'exalter l'interaction lumière-matière pour atteindre le régime du quanta et des applications en information quantique. C'est le domaine privilégié de l'électrodynamique quantique en cavité (Cavity-QED), qui a permis d'une part de bien comprendre les aspects fondamentaux de l'interaction lumière-matière et d'autre part la concrétisation de démonstrations clés en optique quantique.

Dans ce contexte, les nano-résonateurs apparaissent comme une nouvelle plateforme prometteuse et intégrable pour atteindre la régime de couplage ford à l'échelle nanométrique, avec des applications en optique non linéaire, en information quantique et en électrodynamique quantique. Par construction, les nano-résonateurs permettent de confiner très localement le champs électromagnétique et un design judicieux de leur géométrie leur permet d'atteindre des facteurs de qualité extrêmement élevés, pouvant ainsi stocker pendant longtemps les photons, suffisamment longtemps pour que l'interaction avec les atomes soit efficace. Malheureusement de telles performances s'obtiennent au detriment de prouesses technologiques et sont très sensibles aux moindres imperfections.

Une analyse rigoureuse par C. Sauvan *et al.* [29] montre que le facteur de qualité dépend proportionnellement de l'indice de groupe n_g vue par le mode optique dans la nanocavité. On peut ainsi manipuler ce dernier et l'augmenter afin d'exalter le durée d'une vie de nanocavité ayant un facteur de qualité initial relativement modeste pour que celui-ci soit indépendant de l'état de l'art technologique. Or, la relation (3) montre que la vitesse de groupe, et donc n_g,

3. La largeur spectrale de l'impulsion doit être inférieure à la largeur spectrale de la fenêtre de transparence induite par l'effet d'oscillation cohérente de population

depend de la dispersion de l'indice de refraction. Une forte dispersion induit un grand indice de groupe et par consequent une augmentation du facteur de qualité. Une façon simple de de comprendre facilement cette exaltation est de considérer une cavité de type Fabry-Pérot : Deux miroirs séparés d'une distance L. La durée de vie des photons dans le résonateur, et donc Q, dépend du nombre moyen d'allée-retour dans la cavité avant de s'en échapper. Si on insère entre les miroirs un milieu transparent mais avec une forte dispersion, alors l'indice de groupe devient grand. La vitesse de groupe, vitesse à laquelle se propage les photons devient faible et les photons mettront beaucoup plus de temps à effectuer le même nombre moyen d'allée-retour avant de s'échapper de la cavité.

L'introduction dans un résonateur de type Fabry-Pérot d'un milieu atomique ayant une forte dispersion d'indice et donc un indice de groupe n_g élevé, a permis de réduire considérablement la largeur de résonance de la cavité, ce qui constitue une signature de l'augmentation de la durée de vie ou d'une manière équivalent, du facteur de qualité Q du résonateur. Parmi les processus qui permettent d'obtenir une forte dispersion de l'indice, la transparence induite électromagnétiquement [18] ou l'oscillation cohérente de populations [4].

Dans le cadre de mes activités de recherche, j'ai transposé cette approche d'exaltation de l'indice de groupe en physique atomique vers la physique du solide. J'ai démontré une augmentation de la durée de vie d'une nanocavité semi-conductrice à cristal photonique de type L3 (voir fig. 15), contenant des puits quantiques dans lesquels une forte dispersion de l'indice est engendrée par effet d'oscillation cohérente de populations. La durée de vie de la nanocavité est également augmentée en bénéficiant de la forte dispersion non linéaire qui caractérise les milieux actifs. Cet effet est dû aux non-linéarités d'ordre 3 qui sont particulièrement forts dans les puits quantiques.

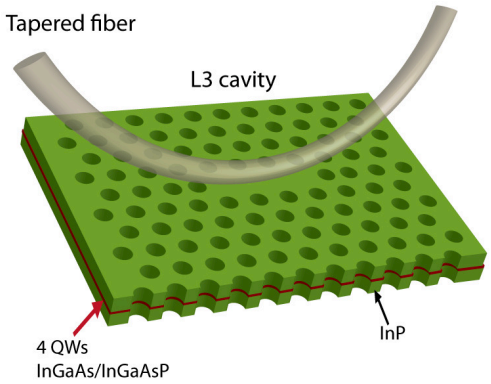

FIGURE 15 – Représentation 3D de la nanocavité L3 et de la fibre étirée permettant le couplage optique dans celle-ci.

La nanocavité que nous avons utilisée a été fabriquée au LPN, maintenant le C2N. La figure 15 en donne une représentation. Il s'agit d'une nanocavité L3 formée en omettant 3 trous dans un cristal photonique 2D. La nanocavité est une membrane InP de 260 nm d'épaisseur contenant des puits quantiques inGaAs/InGaAsP. La structure du cristal photonique est hexagonale avec une période entre les trous $a = 450$ nm et un rayon de trou $r = 120$ nm. La facteur de qualité initial de la nanocavité vaut 3750. Pour les démonstrations expérimen-

tales, nous avons utilisé une source laser continu fibrée accordable entre 1490 nm et 1610 nm, et delivrant une puissance maximale de 15 mW. Le couplage de la lumière (environ $\sim 7\,\%$) dans la cavité est évanescent et est assuré par une fibre étirée (diamètre $\sim 1.5\,\mu$m) déposée sur la cavité en dessus de la membrane. L'oscillation cohérente de populations est engendrée dans les puits quantiques en imprégnant une modulation sinusoïdale de fréquence δ à l'intensité du laser et telle que $\delta < 1/\tau_{\mathrm{r}}$, où $\tau_{\mathrm{r}} = 200$ ps est la durée de vie des porteurs dans les puits quantiques [6, 30]. L'effet d'oscillation cohérente de populations induit ainsi une forte dispersion de l'indice, en plus de la dispersion non linéaire des puits quantiques.

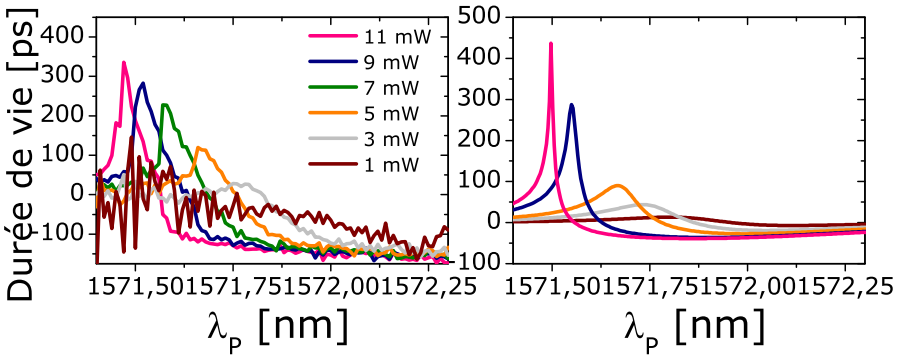

Figure 16 – Durée de vie de la cavité en fonction de la longueur d'onde du laser et pour différentes puissances. La fréquence de modulation δ vaut 240 MHz. Gauche : résultats expérimentaux. Droite : Analyse théorique.

La figure 16 montre les résultats obtenus dans la nanocavité [31] en terme de durée de vie en fonction de la longueur d'onde du laser et pour différentes puissances optique. Ces puissance sont celles indiquées par le laser. Seul 0.5 % (quelques μW) de cette puissance est injectée dans le fibre étirée. L'analyse des résultats expérimentaux montrent une durée de vie maximale de 342 ps, soit une exaltation d'un facteur 110 par rapport à la durée de vie initiale de la nanocavité de 3.2 ps déduite du facteur de qualité initial $Q_{\mathrm{i}} = 3750$. La figure 16, droite, représente les résultats théoriques obtenus en considérant un modèle basé sur la théorie des modes couplés [32], décrivant le dynamique du champ dans la nanocavité et la dynamique des porteurs dans les puits quantiques.

Les résultats obtenus dans le domaine temporel ont été par ailleurs confirmés par des mesures spectrales de la largeur de résonance de la nanocavité. En effet, nous avons mesuré la largeur totale à mi-hauteur de la résonance, qui est de 440 MHz. En considérant la largeur initiale de 50 GHz de la nanocavité, ceci correspond à une réduction d'un facteur 113, valeur proche du facteur d'exaltation de la durée de vie mesurée temporellement.

Ces résultats ont soulevé une grande interrogation de la part de la communauté scientifique lors de la soumission pour publication de nos travaux. Il s'agissait de la correspondance entre la largeur à mi-hauteur de la résonance, le facteur de qualité et le temps de vie déduit dans nos experiences par la mesure du temps de groupe τ_g. Pour une résonance lorentzienne, ces grandeurs sont reliées entre elles et la mesure d'une d'entre elles suffit à connaitre les autres et à caractériser la résonance. Pour les résonances non symétriques, telles que celles qu'on a mesurées, cette correspondance n'est pas pas triviale même si nos calculs théoriques en montrent l'existence. Pour confirmer ces dires, en collaboration avec Yannick Dumeige,

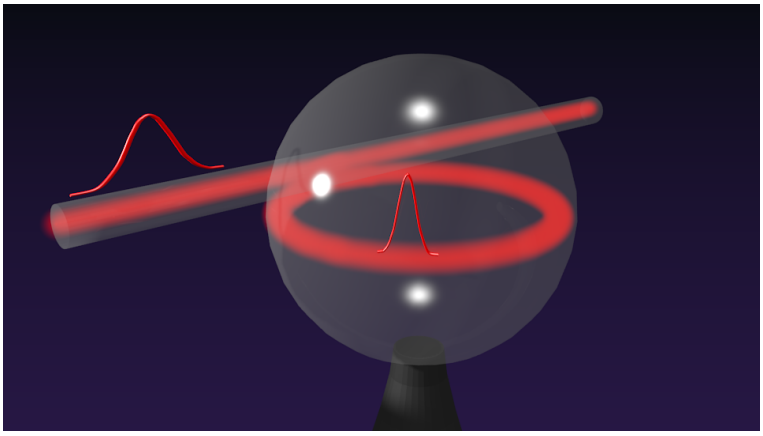

FIGURE 17 – Représentation de la microsphère dopée aux ions Er^{3+} et de la fibre optique utilsée pour coupler la pompe et la sonde aux modes de galeries du résonateur.

nous avons transposé dans le domaine atomique l'experience de forte dispersion dans une nanocavité et mesuré directement la durée de vie des photons dans une microsphère dopée aux ions Erbium triplements ionisés [7], comme le montre la Fig. 17. La transition $^4I_{13/2} \longrightarrow {}^4I_{15/2}$ des ions Er^{3+} à 1536 nm est utilisée comme système atomique à deux niveaux pour l'effet OCP et pour ralentir la lumière. La mesure directe du temps de vie de photons dans la cavité repose sur la mesure du déclin d'un champ résonant de très courte durée ou qu'on éteint brutalement. Expérimentalement, nous utilisons la même technique que celle utilisée dans la démonstration décrite dans la section précédente [4] pour générer le champ pompe et la sonde nécessaires pour l'effet OCP. Puis la sonde est éteinte brutalement en arrêtant la modulation.

La décroissance du champ sonde en fonction du temps donne une durée de vie de photons dans la cavité de 2.5 ms ce qui correspond à un facteur de qualité de 3×10^{12}. La microsphère utilisée au cours de cette expérience a un facteur de qualité initial de 3.2×10^5, soit une augmentation de 7 ordre de grandeur de la durée de vie grâce au ralentissement de la lumière.

3. Nanocavités à cristal photonique à 800 nm pour le couplage lumière-atome

Projets associés : ICQOQS (Labex Nanosaclay flagship phase 2), PHONAPI (CNANO IdF).

Collaborations externes : Gabriel Dutier (LPL, Université Paris-Nord) ; Rajiv Boddeda, Quentin Glorieux, Alberto Bramati (LKB)

Collaborations C2N : Ariel Levenson, Fabrice Raineri, Dorian Sanchez, Alejandro Yacomotti, Isabelle Sagnes, Gregoire Baudoin, Ingénieurs Salles Blanches, Ivens Saber (PhD)

L'interaction forte atome-lumière est une brique essentielle pour l'information quantique

4. Modulation d'amplitude sinusoïdale d'un laser continu à la fréquence δ. Spectralement, deux composantes à $\pm\delta$ sont générées autour de la porteuse. Elles jouent le rôle de la sonde tandis que la porteuse joue le rôle de la pompe. En changeant la fréquence de modulation, on change le désaccord spectrale entre la pompe et la sonde.

[33]. Au niveau ultime, un seul photon suffit à manipuler un atome et un atome unique permet de modifier les propriétés d'un photon. C'est un des buts de la recherche fondamentale pour des applications dans le domaine de l'information quantique. L'interaction atome-lumière est régie par la probabilité p qu'a un photon d'être absorbé par un atome. Cette probabilité varie comme $p \simeq \sigma/A$, où $\sigma = 3\lambda^2/2\pi$ est la section efficace d'absorption de l'atome et A la section transverse du mode optique du photon. Renforcer l'interaction atome-photon s'obtient en focalisant fortement le mode optique ou en exaltant artificiellement σ en insérant l'atome dans un résonateur Fabry-Pérot. C'est là le domaine de l'électrodynamique quantique en cavité [34].

Récemment des structures nanométriques sont apparues comme un moyen d'étudier l'interaction forte lumière-matière [35–37]. En effet, la combinaison des atomes froids et des nanostructures à cristal photonique a ouvert une nouvelle voie vers le couplage fort atomes-photons. C'est cette voie que j'ai entrepris d'explorer au C2N en développant une plateforme nanophotonique compatible avec les atomes de Rb ou de Cs, atomes usuellement utilisés dans le domaine de l'électrodynamique quantique, ou encore les atomes d'Argon. Le dénominateur commun à toutes ces espèces atomiques est la longueur d'onde de leurs résonances atomiques, située autour de 800 nm.

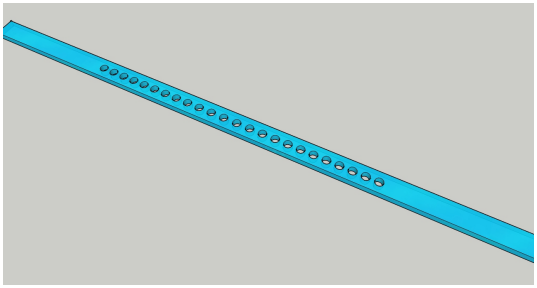

Figure 18 – Représentation de la cavité de type "nanobeam". Le cristal photonique constitue les miroirs de la cavité au centre de la structure et dont la longueur vaut une période du cristal photonique.

Les nanocavités à cristal photonique offrent un outil idéal pour explorer l'interaction forte entre atomes et photons. Elles permettent à la fois un fort confinement de la lumière, dans des volumes de l'ordre de λ^3, et une forte exaltation du champ électromagnétique grâce aux grands facteurs de qualité qui les caractérisent. En vue de coupler des atomes de Rb (λ =780 nm), de Cs (λ =850 nm) ou encore d'Ar (λ =811 nm) aux nanocavités, nous avons entrepris de les développer et d'en optimiser les performances afin d'atteindre le régime de fort couplage. Un des défis que nous avions à relever concerne les longueurs d'ondes de résonance des nanocavités qui doivent avoisiner celle de la transition optique du rubidium, du cesium ou bien encore celle de l'argon, et qui sont environ deux fois plus petites que la longueur d'onde télécom à laquelle nous sommes habitués de travailler au C2N. Le design, la simulation numérique et la fabrication de ces nanocavités ont été les objectifs de la thèse d'Ivens Saber, soutenue en octobre 2018 [38]. Parmi, les différents designs, nous avons opté pour des nanocavités appelées nanobeams (Fig. 18). Elles consistent en un guide d'onde ruban de section rectangulaire ayant dans notre cas une épaisseur de 150 nm et une largeur de 300 nm et dans lequel nous avons réalisé un cristal photonique à une dimension (1D) formé par des trous d'air ayant un rayon de 60 nm et une périodicité

d'environ 180 nm. Le choix de ces dimensions est dicté par les longueurs d'ondes de résonance visées comme on le verra par la suite. Le cristal photonique 1D joue le rôle de miroirs de la cavité. La longueur de la cavité vaut une période du cristal photonique au centre de la nanostructure. Pour que le cristal photonique agisse comme un miroir, la longueur d'onde de la résonance visée doit être dans le bande photonique interdite de ce dernier. Néanmoins, une périodicité constante du cristal photonique donne de piètres résultats en terme de facteurs de qualité, car limités par le désaccord modal entre le mode optique se propageant dans le guide d'onde ruban et le mode se propageant dans le cristal photonique. Pour l'optimisation de nos nanocavités, nous nous sommes inspirés du savoir-faire de notre équipe, et plus particulière du groupe de Fabrice Raineri, dans le design de nanocavités à 1550 nm et dont les facteurs de qualités peuvent atteindre 10^6 [39]. De tels facteurs de qualité sont obtenus en réalisant une ingénierie complexe dans le design des cavités. Pour comprendre le principe de cette ingénierie, rappelons que le facteur de qualité Q d'une cavité peut se décomposer comme :

$$1/Q = 1/Q_l + 1/Q_t, \tag{6}$$

où Q_l est le facteur de qualité associé aux pertes longitudinales et qui est augmenté en optimisant la réflectivité des miroirs. Q_t est le facteur de qualité associé aux pertes transverses. Une analyse dans l'espace de Fourier montre que Q_t est limité par la diffusion hors plan [40, 41]. Pour minimiser la puissance diffusée, il est nécessaire de supprimer les composantes du vecteur d'onde k se trouvant dans le cone de lumière associées aux fuites vers le haut ou vers le bas. En pratique, ceci est obtenu quand le mode a un profil spatial gaussien dans l'espace réel [42–44]. Un tel mode est obtenu en faisant une ingénierie du cristal photonique [39, 45, 46], modifiant un ou plusieurs paramètres géométriques, comme le rayon des trous, la période ou encore la largeur ou la hauteur, pour manipuler la bande photonique interdite. Dans notre design, nous modulons la période du cristal photonique formant les miroirs suivant la direction de propagation [39], et où la longueur de la cavité est réduite à une seule période au centre, minimisant ainsi le volume modale [47].

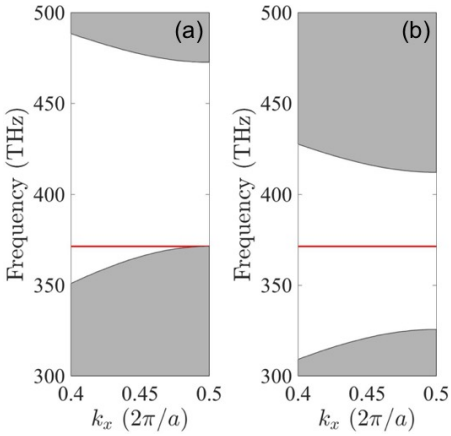

FIGURE 19 – (a) : Diagramme de bande d'un cristal photonique 1D formé dans un guide ridge en GaInP ayant une section de 300 nm sur 150 nm.La période du cristal photonique est de 180 nm avec des trous d'air ayant un rayon de 60 nm. (b) : Même cristal photonique que (a) mais avec une période de 215 nm. La ligne rouge représente la fréquence de résonance visée $f_0 = 275$ THz, soit $\lambda_0 = 800$ nm.

Nos cavités sont conçues dans du GaInP, matériau dont l'absorption est nulle à 800 nm (gap électronique à 675 nm) et dont l'indice vaut $n \simeq 3.3$, ce qui permet un meilleur confinement de la lumière. Pour l'optimisation, la période varie entre 180 nm au centre jusqu'à 215 nm aux extrémités suivant un algorithme qui permet d'obtenir un mode de résonance ayant un profil gaussien. L'algorithme donne la période en fonction de la position dans le cristal photonique. Suivant l'analyse de la Ref. [39], la première période est choisie de telle sorte à ce que le fréquence de résonance ($f_0 = 375$ THz, $\lambda_0 = 800$ nm) de la cavité coincide avec le fréquence de coupure du mode diélectrique du cristal photonique at $k = 0.5(2\pi/a)$. Ceci est obtenu pour une période 180 nm, un rayon de trou de 60 nm et une section du guide ruban de 150 nm par 300 nm. Dans la bande photonique interdite, l'enveloppe du champ est évanescente et décroît comme e^{-qx}, où q est la partie imaginaire du vecteur d'onde. A la fréquence de coupure, $q = 0$. La figure 19(a) montre le diagramme de bande d'un cristal photonique 1D ayant une période $a = 180$ nm réalisé dans un guide ridge de InGaP ayant une section de 300 nm sur 150 nm. La ligne rouge représente la résonance visée et les régions grises sont la bande air (haut) et la bande diélectrique (bas) du cristal photonique. La valeur maximale de l'atténuation q est obtenue pour une période $a = 215$ nm, lorsque la fréquence de résonance f_0 se trouve au centre de la bande photonique interdite, comme cela est représenté sur la Fig. 19(b). Afin d'obtenir un champ avec un profil gaussien, l'atténuation q doit varier linéairement suivant la direction x du cristal photonique, $q = Bx$, de sorte à ce que la décroissance exponentielle e^{-qx} devienne gaussienne e^{-Bx^2}. L'algorithme que nous avons élaboré permet de déterminer l'évolution de la période entre 180 nm et 215 nm en fonction de x pour obtenir un mode gaussien dont la largeur à mi-hauteur est fixée par le seul paramètre variable B. L'évolution de la période est représentée sur la Fig. 20 en fonction de la position dans le miroir cristal photonique pour une largeur à mi-hauteur du mode de 1 μm. Les carrés sont les vraies positions des trous du cristal photonique suivant l'algorithme théorique. La courbe noir indique le profil gaussien du mode. Des trous additionnels avec la période maximale sont ajoutés à la fin du cristal photonique pour augmenter la facteur Q.

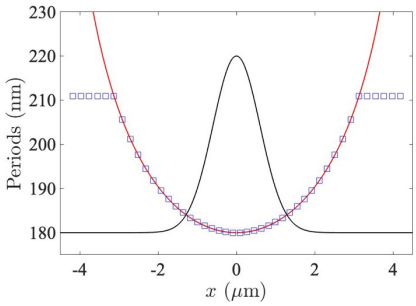

Figure 20 – Evolution de la période en fonction de la pénétration dans le miroir. $x = 0$ correspond au centre de la cavité. La courbe rouge est l'évolution théorique et les carrés bleus représentent les périodes réelles en fonction de la vraie position des trous. La courbe noire représente le profil gaussien de mode de résonance ayant une largeur à mi-hauteur de 1 μm.

Les propriétés optiques des nanocavités ainsi conçues sont simulées à l'aide de calculs 3D en FDTD (finite-difference time-domain) réalisés avec LUMERICAL FDTD. Nous obtenons un mode fondamental à 811 nm, proche de la longueur d'onde résonance ciblée lors de la conception. Le facteur de qualité de ce mode vaut 1.5×10^7 et a un volume modal de 0.01 μm^3,

soit $\simeq 0.64(\lambda/n)^3$, où n est l'indice du GaInP constituant le guide ruban. Les résonances d'ordre deux et trois sont respectivement à 823 nm et 836 nm et ont des facteurs de qualité de 3.6×10^6 et 2×10^6 et des volumes valant respectivement $0.81(\lambda/n)^3$ et $0.91(\lambda/n)^3$. La figure 21 montre le profil 2D du mode fondamental dans le plan XY de la cavité. Le mode est principalement localisé entre les trous d'air dans le diélectrique comme attendu puisque la longueur d'onde de résonance visée est proche de la bande diélectrique du cristal photonique. L'intensité est maximale au milieu de la cavité et a un profil gaussien.

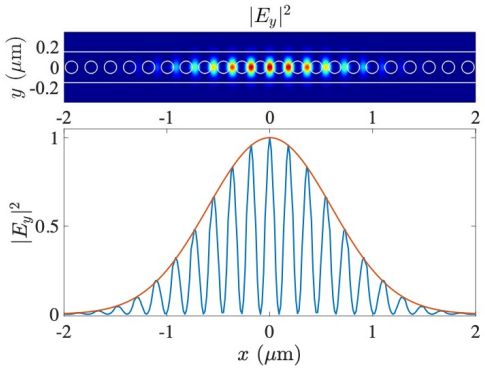

FIGURE 21 – Profil du mode d'une nanocavité obtenu par simulations numériques FDTD pour une épaisseur de 150 nm, une largeur de 300 nm, un rayon de trous de 60 nm. La période initiale de chaque miroir cristal photonique est de 180 nm, puis la période augmente suivant un algorithme que nous avons établi en vue d'optimiser le facteur Q de la nanocavité.

Contrairement, à l'électrodynamique quantique en cavité standard où les atomes sont généralement confinés au centre de la cavité pour un couplage optimal, dans le cas des nanocavités, les atomes seront amenés en dessus de celle-ci à une centaines de nanomètres pour interagir avec la partie évanescente du mode de résonance. Nos calculs théoriques montrent qu'à ces distances la fréquence de Rabi du vide $g = \mu\sqrt{(\pi c)/(\lambda\hbar\varepsilon_0 V)}$, où μ désigne le dipôle atomique, caractérisant le couplage atome-cavité est de l'ordre de 1 GHz, ce qui permet d'être dans le régime de forte cooperativité $g^2/\kappa\gamma \gg 1$ où γ et la largeur homogène de la résonance atomique (rubidium ou argon) et $\kappa = \pi c/(\lambda Q)$ est la largeur de résonance de la nanocavité inversement proportionnelle au facteur de qualité Q.

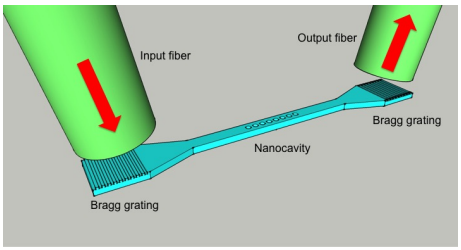

FIGURE 22 – Représentation de la nanostructure contenant la nanocavité ainsi que les réseaux de Bragg servant à coupler la lumière depuis une fibre optique standard vers le guide ruban puis vers la nanocavité, et finalement depuis le guide rubean vers la fibre optique.

Une fois la nanocavité conçue, il se posera la question de l'injection de la lumière depuis l'espace libre ou bien par des fibres optiques standards. La figure 22 montre le nanostructure complète qui répond à ce problème. Elle est constituée au centre de la nanocavité optimisée

pour que son facteur de qualité soit le plus élevé possible et de larges réseaux de Bragg aux deux extrémités. Ces réseaux sont conçus de telle sorte à ce qu'un champ quasi perpendiculaire, véhiculé par des fibres optiques, diffracte dans le guide d'onde ruban. Leur design et leur optimisation a fait également partie de la thèse d'Ivens Saber [38]. Dans ce type de nanocavités, le couplage se fait en ligne depuis le guide dans lequel est fabriqué la nanocavité. Nous avons malheureusement constaté que ce type de cavité souffre d'une faible transmission du mode fundamental à cause de désaccord modal entre le mode de la cavité et le mode se propageant dans le guide. Afin de remédier à ce problème, nous avons également conçu des nanocavités pour lesquelles le couplage se fait d'une manière évanescente vers des guides adjacents.

La fabrication des nanostrutures se fait en salles blanches du C2N. Elle commence par la croissance de 150 nm du GaInP sur un substrat de GaAs par épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (metal-organic chemical vapor deposition MOCVD). L'échantillon InGaP/GaAs est ensuite collé sur un substrat de Si/SiO_2 à l'aide du polymère benzocyclobutene (BCB). Finalement, le substrat de GaAs est enlevé par gravure chimique pour obtenir un film mince de 150 nm d'épaisseur de GaInP sur un substrat de Si/SiO_2. Afin de réaliser les nanocavités, nous avons utilisé le lithographie électronique. Pour cela nous commençons par déposer une fine couche de résine électro-sensible HSQ ($\sim$600 nm) sur laquelle nous reportons par lithographie la géométrie des nanocavités et des guides d'accès et aussi des réseaux de couplage. Après avoir enlevé la résine non exposée, le GaInP est gravé en utilisant la gravure ionique réactive (ICP-RIE). La figure 23 montre des images obtenues au microscope

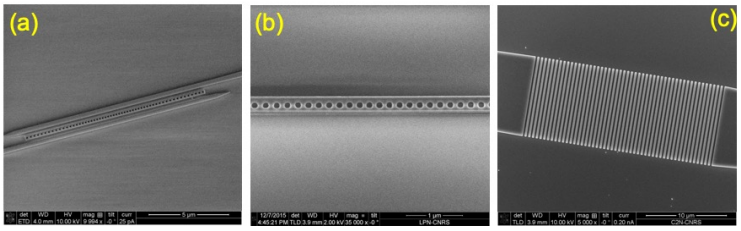

Figure 23 – Images prises au Microscope Electronique à Balayage (MEB). (a) : Nanocavité avec un couplage lateral vers deux guides adjacents. (b) : Nanocavité dans le guide ridge. (c) : Réseau de Bragg à l'extrémité du guide pour le couplage vers ou depuis l'espace libre ou une fibre.

à balayage électronique d'une nanocavité et aussi des guides de couplages et d'un réseau de Bragg. Les réseaux de Bragg sont utilisés pour coupler ou découpler la lumière depuis une fibre optique vers le guide d'accès. La période du réseau de Bragg est de 470 nm avec un rapport cyclique de 50 %. Cette période a été choisi afin d'obtenir un angle de diffraction de $\sim 10°$ par rapport à la normale du réseau pour une longueur d'onde de 800 nm, ce qui permet d'éviter la rétro réflection vers la nanocavité de la diffraction du second ordre. Les réseaux de Bragg sont fabriqués simultanément avec les nanocavités en gravant le GaInP sur une demie période. Les réseaux ont une largeur de 10 μm sur une longueur de 15 μm. Pour éviter des pertes optiques, une propagation adiabatique est réalisée à l'aide un guide de 300 μm de long et ayant une largeur de 300 nm du coté de la nanocavité et 10 μm du coté du réseau [48].

La figure 24 représente un spectre typique d'une cavité réalisé au C2N pris en collectant la lumière transmise au niveau du réseau de diffraction de sortie (a) ou au niveau de la

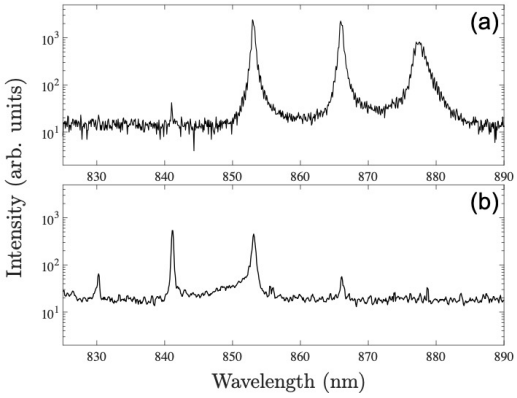

FIGURE 24 – Spectre de transmission d'une nanocavité. La largeur du guide ruban est de 300 nm et sa hauteur est de 150 nm. Le rayon des trous est de 60 nm. La période initiale de chaque miroir cristal photonique est de 180 nm, puis la période augmente suivant un algorithme que nous avons établi en vue d'optimiser le facteur Q de la nanocavité.

nanocavité (b). On constate que la transmission du mode fondamental est faible. Ceci est dû au désaccord modal entre le mode de la cavité et le mode se propageant dans le guide. Le mode fondamental est à ~ 830 nm et est proche de la résonance prédite par les simulations numériques. La fabrication de plusieurs nanostructures en faisant varier les paramètres géométriques (rayon des trous, périodes, ou encore largeur des guides) et en utilisant l'accordabilité en température des nanocavités, nous a permis d'accorder les resonances des nanocavités. La figure 25 montre par exemple l'évolution des résonances lorsqu'on change la période du cristal photonique constituant la nanocavité. Nous avons également étudié l'évolution des résonances lorsqu'on change la température de la nanocavité. Paramètres géométriques et température sont deux "boutons" qui permettront d'accorder la longueur d'onde de résonance de la nanocavité pour qu'elle coïncide avec la résonance atomique.

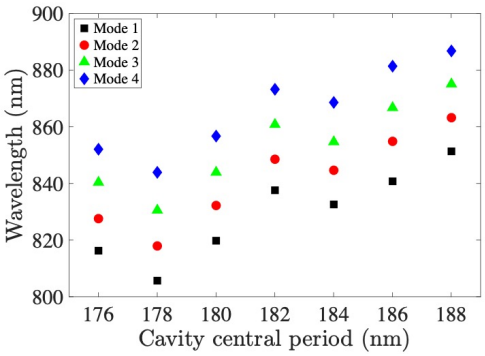

FIGURE 25 – Evolution des 4 premières résonances en fonction de la période du cristal photonique constituant la nanocavité.

En collaboration avec Rajiv Boddeda et Alberto Bramati du LKB, nous avons caractérisé les nanocavités réalisées en déterminant les resonances optiques et leurs facteurs de qualité. La figure 26 montre par exemple la résonance du second mode de la Fig. 24 mesurée finement à l'aide d'un laser continu accordable. Le facteur de qualité est de l'ordre de 2×10^4, soit trois à quatre ordres de grandeurs plus petits que les résultats de nos simulations FDTD. Cette

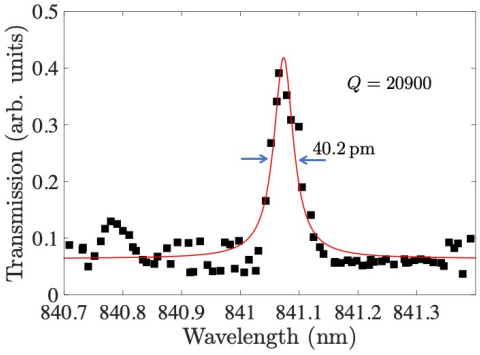

Figure 26 – Spectre de transmission de la résonance à 841 nm. La largeur à mi-hauteur de la résonance vaut 40.2 pm, ce qui donne un facteur de qualité $Q \simeq 20900$.

difference s'explique par les petites dimensions des structures réalisées. En effet à 800 nm, les dimensions sont plus petites que les structures fonctionnant aux longueurs d'onde télécom. Une partie non négligeable du mode optique se trouve à l'interface GaInP/SiO_2. On devient donc plus sensibles aux rugosités de surface et aux imperfections technologiques. Dans la prochaine generation de nanocavités, nous modifierons les processus de fabrications en Salles Blanches du C2N afin d'améliorer entre autres les états de surfaces.

D'autres études optiques ont également été faites, notamment sur les nanocavités à couplage évanescent. Nous avons en effet étudié l'évolution des modes de résonance et leurs facteurs de qualités en fonction de la distance d entre la nanocavité et les guides de couplages ou encore en fonction de la largeur L des guides. L'impact de la distance d est de changer l'intégrale de recouvrement entre le mode de la nanocavité et le mode dans le guide et donc le taux de couplage. La largeur L des guides de couplage à pour effet de changer le vecteur d'onde du mode du guide. Pour une certaine largeur, ce vecteur d'onde coïncide avec celui du mode résonant, ce qui entraine un couplage optimal.

Les nanocavités que nous avons développées ont leurs modes de résonances confinés dans le diélectrique (voir Fig. 21). Nous avons également développé des nanocavités dont les modes de résonances sont confinés dans l'air, dans les trous du cristal photonique, ce qui permettra un meilleur recouvrement entre les modes optiques et les atomes [38].

4. Génération des triplets de photons

Projet associé : TRIQUI (ANR)

Collaborations externes : Benoît Boulanger (Institut Néel) ; Mathieu Chauvet (Femto-ST) ; Hugo Zbinden (GAP, Genève), Richard Simon, Gilles Mellin (Draka) ; Adrien Borne (PhD cotutelle C2N-Institut Néel) ; Audrey Dot (PhD cotutelle C2N-Institut Néel)

Collaborations C2N : Ariel Levenson, Nadia Belabas, David Barral (Post-Doc)

La génération de triplets de photons est la création simultanée de trois photons à partir de la scission d'un seul photon au cours d'un processus non linéaire du troisième ordre. De part la nature de leur génération, ces triplets photons présentent de fortes corrélations à trois corps. Ils constituent un nouvel état quantique de la lumière appelé état triplet. Ces états

triplets sont très intéressants du point de vue de la physique quantique. Ils sont similaires aux photons jumeaux produits par un processus non linéaire du second ordre et qui ont joués un role fondamental dans le domaine de l'optique quantique et de l'information quantique. Les états triplets de photons constitueraient de nouveaux états de la lumière purement quantique dont la statistique va au delà des statistiques gaussiennes associées aux états cohérents ou aux états comprimés de lumière.

Les triplets de photons sont produits dans milieu non linéaire ayant une susceptibilité diélectrique d'ordre 3 ($\chi^{(3)}$). Au cours du processus, un photon pompe donne naissance simultanément à trois photons. Comme pour les photons jumeaux, le processus est régi par deux conditions : la conservation d'énergie,

$$\omega_p = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3, \tag{7}$$

et la conservation du vecteur d'onde

$$\overrightarrow{k}_p = \overrightarrow{k}_1 + \overrightarrow{k}_2 + \overrightarrow{k}_3. \tag{8}$$

Contrairement au cas de la génération de photons jumeaux, seules, ces 2 équation ne suffisent pas pour fixer un triplet de photons, et ont une infinité de solutions lorsque seulement la pompe est définie par la donnée de son vecteur d'onde $\overrightarrow{k}_p$ et de sa longueur d'onde $\lambda_p = 2\pi c/\omega_p$. Ce continuum de solutions et la faiblesse de la susceptibilité diélectrique du troisième ordre 3 (typiquement, $\chi^{(3)} \simeq 10^{-21}\,\mathrm{m}^2/\mathrm{V}^2$), rendent le processus de génération des triplet très peu efficace. Pour estimer cette efficacité, nous avons calculé le taux de generation des triplets en utilisant la règle d'or de Fermi

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar}|\langle \overrightarrow{k}_1, \overrightarrow{k}_2, \overrightarrow{k}_3|\hat{H}|0,0,0\rangle|^2\rho, \tag{9}$$

qui donne la probabilité de transition de l'état du vide $|0,0,0\rangle$ vers l'état $|\overrightarrow{k}_1, \overrightarrow{k}_2, \overrightarrow{k}_3\rangle$ contenant un photon par mode, sous l'action de l'Hamiltonien $\hat{H} = \hbar\gamma(\hat{a}_1\hat{a}_2\hat{a}_3 + \hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2^\dagger\hat{a}_3^\dagger)$ décrivant le processus de génération des triplets, γ étant proportionnel à $\chi^{(3)}$ et à l'amplitude du champ pompe. ρ est la densité des états triplets. Moins d'un triplet par jour est prédit dans le cristal de KTP par exemple. Ce cristal a été choisi car il a été utilisé par notre collaborateur Benoît Boulanger à Grenoble pour la première démonstration de la generation des triplets lorsque deux photons sur trois sont injectés à l'entrée du cristal non linéaire. Dans cette situation particulière, un grand nombre de triplets est généré [49]. Dans cette expérience, un cristal de KTP de 25 mm présentant une nonlinéarité $\chi^{(3)} \simeq 10^{-21}\,\mathrm{m}^2/\mathrm{V}^2$ est pompé par des impulsions laser de 22 ps et ayant une longueur d'onde $\lambda_p = 532\,\mathrm{nm}$ afin de générer des triplets ayant comme longueurs d'ondes $\lambda_1 = 1474\,\mathrm{nm}$ et $\lambda_2 = \lambda_3 = 1665\,\mathrm{nm}$. Les photons 2 et 3 ont la même longueur d'onde mais ont des polarisations polarisés orthogonales. Parce que la valeur de coefficient non linéaire est faible, la génération des triplets n'a été observée qu'en injectant deux champs intenses à la longueur d'onde λ_2 et λ_3.

L'efficacité peut être encore augmentée en utilisant au lieu du cristal massif, des guides d'onde en KTP. En effet, les dimensions des guides d'ondes étant de l'ordre de quelques μm, l'intensité de la pompe serait plus élevée et compenserai la faiblesse du $\chi^{(3)}$. La condition d'accord de phase (8) est obtenue en utilisant la dépense des indices effectifs des modes

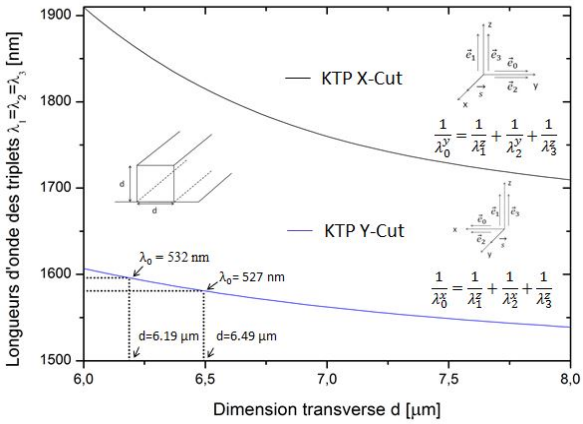

Figure 27 – Evolution de l'accord de phase dans un guide KTP suivant l'axe X (X-cut) en noir et suivant l'axe Y (Y-cut) en bleu pour la generation de triplets de photons dégénérés en longueur d'onde.

triplets et mode pompe se propageant dans le guide en fonction des dimensions de celui-ci. La figure 27 montre l'évolution de l'accord de phase dans un guide de KTP en fonction de la dimension transverse d du guide pour obtenir des triplets dégénérés en longueur d'onde. Lorsque le guide en KTP (Y-cut) est pompé à 532 nm, des triplets à 1596 nm sont générés pour $d = 6.19\,\mu$m. Le but du projet ANR TRIQUI est d'utiliser les guides de KTP pour générer les triplets de photons et d'en étudier les propriétés quantiques.

D'un manière générale, la description quantique des états triplet est donnée par la fonction de Wigner [50] définie comme

$$W(q,p) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} e^{ipx}\langle q - x/2|\hat{\rho}|q + x/2\rangle dx, \tag{10}$$

qui permet de visualiser dans l'espace des phases – observables quadratures amplitude q et phase p – l'état d'un système quantique défini pas sa matrice densité $\hat{\rho}$. D'un point de vue expérimental, la fonction de Wigner peut être reconstruite à l'aide de la tomographie quantique, comme cela a déjà été démontré pour des états cohérents de la lumière (source laser stable), du vide ou un état brillant ayant des fluctuations quantiques comprimées [51, 52]. La tomographie quantique permet la mesure directe de la probabilité de distribution marginale $P(q,\theta)$ exprimant la distribution des résultats de mesure de l'observable quadrature q suivant la direction angulaire θ dans l'espace des phases obtenue par des mesures répétés. La fonction de Wigner est par la suite déterminée sachant que :

$$P(q,\theta) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} W(q\cos\theta - p\sin\theta, q\sin\theta + p\cos\theta)dp. \tag{11}$$

La figure 28 représente la fonction de Wigner d'un état triplet que nous avons calculé pour le cas dégénéré ($3\omega \rightarrow \omega + \omega + \omega$) où les trois photons ont la même direction de propagation et la même longueur d'onde. La fonction de Wigner présente des valeurs négatives dues à des interférences quantiques. D'une manière générale, la fonction de Wigner contient toute l'information sur l'état quantique de la lumière, et notamment les propriétés de corrélations entre les 3 photons, notamment dans le cas ou les triplets sont non dégénérés où les triplets

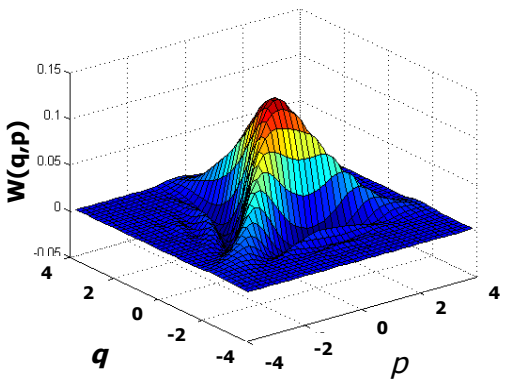

FIGURE 28 – Fonction de Wigner d'un état triplet dont les photons sont dégénérés en longueur d'onde.

peuvent être séparés les uns des autres. Cela dit, nous pouvons accéder directement aux corrélations quantique sans nécessairement faire la tomographie quantique.

Une manière de mesurer les corrélations quantiques s'inspire de l'expérience utilisée pour mesurer les corrélations quantiques des photons jumeaux [53], où ceux-ci sont recombinés dans un cristal non linéaire pour donner naissance à un champ à la fréquence $\omega_1 + \omega_2$ dont les propriétés spectrales et temporelles sont révélatrices du caractère jumeaux des photons ω_1 et ω_2. Nous avons adapté cette technique pour évaluer théoriquement les propriétés de corrélations quantiques des triplets de photons. Ce travail théorique [54] a été fait en collaboration avec l'équipe de Benoit Boulanger dans le cadre d'une thèse en co-tutelle effectuée par Audrey Dot.

Plus récemment, nous avons considéré les propriétés quantiques des triplets de photons dans le contexte des variables continues, c'est à dire par la mesure directe des fluctuations quantiques du champ électromagnétique associé aux triplets de photons. C'est la manière conventionnelle en optique d'explorer les propriétés quantiques de la lumière : envoyer celle-ci sur une photodiode à fort rendement quantique, suivie d'une chainé de détection sensible très faible bruit et générer un signal électrique proportionnel aux fluctuations quantiques. La question que nous nous sommes posés est de savoir si les triplets de photon en régime de variables continues étaient intriqués et comment quantifier cette intrication quantique ? D'un point de vue théorique, pour répondre à la première interrogation, nous avons dû résoudre l'équation d'evolution des opérateurs annihilation $\hat{a}_k$ correspondants aux triplets, qui s'écrit dans la représentation de Heisenberg comme

$$\frac{d\hat{a}_k}{dt} = \frac{\imath}{\hbar}[\hat{H}, \hat{a}_k], \tag{12}$$

pour déterminer les opérateurs d'annihilation après interaction, que l'on note $\hat{A}_k$. Dans l'équation (12), $\hat{H} = \hbar\kappa(\hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2^\dagger\hat{a}_3^\dagger + \hat{a}_1\hat{a}_2\hat{a}_3)$ désigne l'hamiltonien décrivant la génération des triplets de photons. Le coefficient κ est proportionnel à l'amplitude du champ pompe et à la susceptibilité $\chi^{(3)}$. Pour quantifier l'intrication à trois corps entre les modes triplets, nous avons utilisé le critère de non séparabilité, noté S, introduit par van Loock et Furusawa dans leur article de 2003 [55, 56]. Ce critère repose sur la mesure des fluctuations quantiques des

quadratures des modes à caractériser et est donc facilement accessible expérimentalement. Par ailleurs, il permet de quantifier le degré d'intrication entre les modes. Pour déterminer S, nous commençons par introduire les deux quadratures généralisées, définies comme

$$\hat{u} = h_1\hat{P}_1 + h_2\hat{P}_2 + h_3\hat{P}_3 \tag{13}$$

$$\hat{v} = g_1\hat{Q}_1 + g_2\hat{Q}_2 + g_3\hat{Q}_3, \tag{14}$$

où h_k et g_k sont des nombres réels arbitraires et $\hat{P}_k = \hat{A}_k + \hat{A}_k^\dagger$ et $\hat{Q}_k = \imath(\hat{A}_k - \hat{A}_k^\dagger)$ les quadratures conjugués du mode k. Le critère de non séparabilité est donné par la somme des variances des deux quadratures $\hat{u}$ et $\hat{v}$, et s'écrit donc

$$S = \langle \Delta\hat{u}^2 \rangle + \langle \Delta\hat{v}^2 \rangle. \tag{15}$$

Comme le montre l'équation (15), S peut être mesuré expérimentalement en utilisant des détections homodynes balancées. D'un point de vue théorique, l'équation (15) montre que S est une fonction des coefficients h_k et g_k et donc dépend du choix de ces derniers. Lorsque

$$\begin{aligned} S <& 2\min\{|h_1g_1| + |h_2g_2 + h_3g_3|, \\ & |h_2g_2| + |h_1g_1 + h_3g_3|, |h_3g_3| + |h_1g_1 + h_2g_2|\}, \end{aligned} \tag{16}$$

les trois modes sont complètement intriqués et constitue un système quantique décrit par la matrice densité ρ_{123} non factorisable.

Une des difficultés de ce travail théorique est la résolution exacte de l'équation d'évolution (12) dans le cadre de la mécanique quantique. Les solutions analytiques ne sont pas connues. En utilisant les mathématiques classiques, il a été démontré que les solutions de (12) sont les fonctions elliptiques de Jacobi [49]. Pour résoudre le problème, nous faisons un développement de Baker-Hausdorff jusqu'à l'ordre 5, ce qui est suffisant compte tenu de la faiblesse de l'interaction non linéaire. Nous avons aussi considerer différentes configurations d'interaction en fonction des modes excités au cours du processus de génération des triplets de photons : de la génération spontanée à l'excitation stimulée par la présence simultanée des trois modes. Dans le cas de la generation paramétrique, les trois modes ne présentent pas de correlations quantiques, contrairement à ce que l'on s'attendait, inspirés par les résultats de la génération des photons jumeaux et de la forte intrication quantique les caractérisant. Dans le cas de la triple excitation, nous avons montré que le gain paramétrique défini comme le rapport du nombre moyen de photons générés sur le nombre de moyen de photons incidents est dépendant de la phase relative entre le mode pompe et les modes triplets. Cette situation rappelle le comportement de l'amplificateur paramétrique dépendant de la phase basé sur la generation des photons jumeaux.

La figure 29 montre l'evolution du gain en fonction de la phase relative passant d'une situation où $G > 1$ à $G < 1$ pour 3 phases particulières. Nos calculs théoriques montrent que lorsque $G > 1$, les modes triplets sont intriqués. La figure 30 résume l'ensemble de nos résultats, représentant la critère de non separabilité pour différentes situations en fonction du nombre moyen de photons injectés (seeding) par mode. La partie grise indique la zone quantique dans laquelle le condition (16) est versifiée. La courbe rouge représente S correspondant aux trois modes et obtenue dans le cas de la generation de triplets de photons

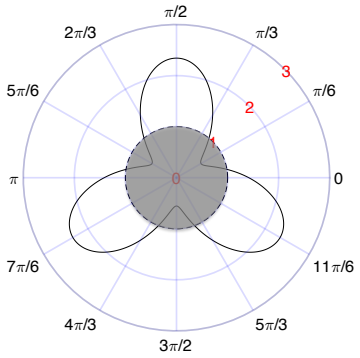

FIGURE 29 – Gain de la génération de triplets de photons dépendante de la phase. Le cercle gris indique le gain unité.

dépendante de la phase. Dans le même configuration d'interaction, lorsque S est calculé pour deux modes sur trois (courbe bleue), il devient plus grand que 2 et viole la condition (16). Ce résultat montre que l'intrication quantique est 'répartie' sur les trois modes. Les courbes verte et violette représentent des situations intermédiaire de mono ou de bi injection. Le cas de la fluorescence n'est pas représenté dans la figure car contrairement au photons jumeaux, l'intrication quantique y est absente. L'ensemble de nos résultats à fait l'objet d'une publication dans Physical Review Letters [9], dans laquelle nous montrons par ailleurs que l'intrication à trois corps dans le cas de la génération des triplets de photons dépendante de la phase est très robuste aux pertes optiques.

La génération des triplets de photons et l'étude de leurs propriétés quantiques est un travail de recherche en cours et qui se fait en étroite collaboration avec Benoît Boulanger (Institut Néel, Grenoble) qui montre la même ferveur et porte un intérêt aussi important que le mien à ce sujet. Nous avons concrétisé cette collaboration, informelle durant des années, par l'obtention d'un financement de l'ANR en Novembre 2017 pour un projet de recherche toujours en cours qui nous permettra de générer les triplets de photons et d'en étudier les propriétés quantiques. Deux autres équipes de renom nous ont rejoint dans cette aventure : l'équipe de Mathieu Chauvet (FEMTO-ST) à Besançon et l'équipe d'Hugo Zbinden (GAP-Quantum Technologies) de Genève.

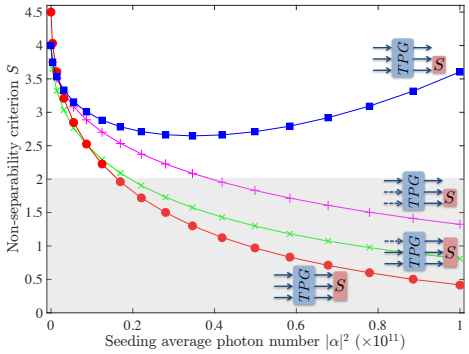

Figure 30 – Evolution du paramètre de non séparabilité S en fonction du nombre moyen de photons injectés par mode. Les flèches pleines (en pointillés) indiquent les modes injectés (non injectés) au cours de la génération des triplets (TPG). Les rectangles roses indiquent les modes pour lesquels S est déterminé.

Perspectives

Attiré par de nouvelles perspectives de recherche et tenant compte de l'évolution des domaines, j'ai volontairement abandonné certaines des activités que j'ai pu aborder depuis mon recrutement. D'autres ont été arrêtées parce que les ressources ne permettaient pas d'aller au delà de ce qui a été démontré. Dans cette partie, je décrirai les activités de recherche que je poursuis actuellement et qui constituent le coeur de mes projets.

Generation de triplets de photons

Projets : Collaborations externes : Benoît Boulanger (Institut Néel) ; Mathieu Chauvet (Femto-ST) ; Hugo Zbinden (GAP, Genève) ;

Collaborations C2N : Ariel Levenson, Nadia Belabas, Da Zhang (PhD, Université de Xi'an), David Barral (Post-Doc)

La génération des triplets de photons reste une activité importante à mes yeux. De mon point de vue, la génération des triplets de photons constituera dans le futur une avancée aussi majeure que celle de la génération des photons jumeaux dans les années 70. Dans les prochaines années, les triplets offriront certainement une plateforme pour l'information quantique aussi riche que celle que nous ont offerte les photons jumeaux et voire même nous permettrons d'aller au-delà des capacités actuelles des photons jumeaux.

Au cours des dernières années, nous avons abordé des aspects théoriques relatifs aux propriétés quantiques des triplets de photons. Dans les prochaines années, nous comptons aborder l'aspect experimental et la generation des triplets de photons dans des guides de KTP. Le taux de génération espéré est faible. Nos estimations théoriques dans les guides de KTP prédisent quelques triplets par seconde pour une puissance optique d'excitation de l'ordre du Watt. A noter que ce taux, même faible, est largement plus grand par rapport à nos premières estimations dans le KTP massif qui étaient de moins d'un triplet par jour ! Une des premières étapes consiste à fabriquer les guides de KTP, spécialement conçus à cet effet par notre partenaire Mathieu Chauvet de FEMTO-ST. Une première génération est en cours de caractérisation à l'Institut Néel par Benoît Boulanger et son équipe. Nos estimations théoriques dans les guides de KTP prédisent quelques triplets par seconde pour une puissance optique d'excitation de l'ordre du Watt. A noter que ce taux, même faible, est largement plus grand par rapport à nos premières estimations dans le KTP massif qui étaient de moins d'un triplet par jour ! Malgré les faibles taux de génération escomptés, la détection des triplets est possible grace notamment aux compteurs de photons supraconducteurs ayant des rendements quantiques avoisinant les 90 % aux longueurs d'ondes télécom, développés

par l'équipe de Hugo Zbinden, partenaire également du projet ANR TRIQUI.

Lorsque les modes associés aux triplets sont excités, les rendements de génération sont plus élevés, et les modes triplets deviennent brillants facilitant ainsi la détection. Nous pouvons dès lors accéder aux propriétés quantiques à l'aide de photodiodes standards et à l'aide de détections homodynes balancées.

Le projet ANR TRIQUI me permettra de passer du stade théorique aux démonstrations expérimentales. Il s'agit dans un premier temps d'élaborer des guides d'ondes non linéaires, obtenus par sciage dans des cristaux de KTP ou de TiO_2 également, et dont les faces d'entrée et de sortie seront revêtus d'un traitement optique anti-reflet pour minimiser les pertes. Nos modèles théoriques montrent que les guides d'ondes seront plus efficaces que les cristaux massifs. Les guides d'ondes seront alors excités par une pompe dont la longueur d'onde est dans le visible (532 nm) pour générer des triplets dans le domaine infrarouge. Nous disposons dans le cadre du projet TRIQUI de compteurs de photons supra-conducteurs très efficaces qui nous permettront non seulement de détecter les photons triplets mais également d'en étudier la statistique. Comme pour les photons jumeaux qui peuvent être obtenus par un processus spontané et stimulé, nous envisageons les deux configurations pour la génération de triplets de photons.

L'étude théorique et expérimentale des propriétés d'états quantiques à trois photons, incluant l'évaluation d'applications basées sur l'utilisation des corrélations quantiques et de l'intrication constitueront les étapes suivantes. Très récemment, en 2020, nous avons mis en evidence une nouvelle ressource pour l'information quantique que peut offrir les triplets de photons. Il s'agit de l'aspect non-gaussien de la statistique des triplets en régime de variables continues. Nous avons déjà mis en evidence ce type de comportement non gaussien dans le cas de la génération de triplets de photons lorsqu'ils sont complètement dégénérés. Nous venons de démontrer que le régime non gaussien peut également être obtenu lorsque les triplets sont non dégénérés, passant d'un régime super-gaussien au régime sub-gaussian en faisant des mesures conditionnées sur les quadratures d'un ou de deux modes triplets.

En conclusion, nous espérons que cette activité soutenue par l'ANR permettra dans les années avenirs l'élaboration d'un corpus unique de savoir fondamental et d'experiences pour la génération et la manipulation des états quantiques à trois photons qui pourraient alors devenir un nouvel outil pour l'information quantique, comme le furent et continuent de le faire les photons jumeaux.

Plateforme nanophotonique pour l'nteraction lumière-matière

Collaborations externes : Julien Laurat (LKB) ; Christophe Sauvan (IOGS)

Collaborations C2N : Ariel Levenson, Fabrice Raineri, Isabelle Sagnes, Gregoire Baudoin, Malik Kemiche(Post-Doc), Sukanya Mahapatra (PhD), Ingénieurs Salles Blanches.

Le couplage lumière-matière peut être exalté en utilisant des cavités Fabry-Pérot à forts facteurs de qualité ou encore en faisant interagir les atomes avec les modes lents de guides optiques à cristal photonique comme ceux que nous avons développés à $\lambda \simeq 1550\,\text{nm}$ dans la cadre du projet ANR CALIN [57, 58]. De forts couplages peuvent être atteints grâce à

des interactions avec des modes lents ayant un indice de groupe [5] $n_g \approx 20$. Le travail de recherche dédié à l'interaction d'atomes avec des modes lents se propageant dans des guides à cristal photonique se fait dans le cadre d'une collaboration avec Julien Laurat du LKB et Christophe Sauvan de l'IOGS à Palaiseau et à travers les projets NANOSTRONG (ANR) et WAVEGUIDEQED (SIRTEQ). Cette activité commence à prendre de l'ampleur en faisant parie du projet européen DAALI qui a commencé officiellement en novembre 2020.

Dans un contexte plus général, l'activité de recherche que je poursuis dans le cadre de cette thématique, s'inscrit dans la perspective de contrôler l'interaction lumière-matière au niveau du quanta : un photon avec un atome pour des applications en optique quantique et en information quantique. C'est là le domaine privilégié de l'électrodynamique quantique en cavité (cavity quantum electrodynamics, CQED), ou le couplage fort entre atome et un photon est obtenu dans une cavité ayant une grande finesse. L'électrodynamique quantique en cavité a conduit à des demonstrations fondamentales en optique quantique et une meilleure comprehension de l'interaction de la lumière avec les atomes.

Les progrès impressionnants dans le domaine des nanotechnogies ont permis d'entrevoir une nouvelle perspective pour l'électrodynamique quantique en cavité, utilisant des micro-résonateurs, dans lesquels les modes optiques sont très confinés dans des volumes proches de λ^3, permettant ainsi une forte augmentation du couplage atome-photon. Récemment, le groupe de Lukin aux Etats-Unis a pu atteindre ce regime de couplage fort entre un atome et le mode résonant d'une nanocavité à cristal photonique [35, 36].

Les progrès de nanofabrications ont également conduit vers une nouvelle alternative à l'électrodynamique quantique en cavité, pavant ainsi la voie vers de nouvelles perspectives de recherche en nanophotonique quantique. Il s'agit de tirer profit fort confinement dans les guides optiques de dimensions nanometriques et de la manipulation de la dispersion de l'indice de refraction. Dans le projet que nous poursuivons, il s'agit d'aller au delà des fibres optiques étirées usuellement utilisées, en proposant comme structures, les guides à cristaux photoniques où la lumière est non seulement confinée mais se propage également plus lentement, offrant un levier additionnel pour atteindre le régime de couplage fort sans cavités.

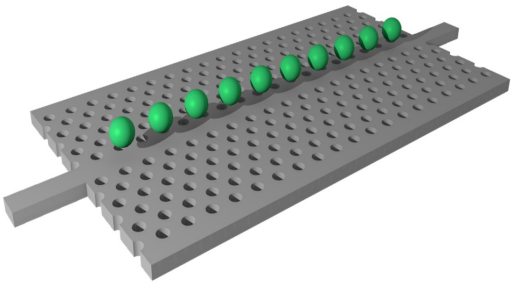

FIGURE 31 – Schema de principe : atomes de Rb proches d'un guide cristal photonique W1 interagissant avec le mode lent guidé.

L'ambition de cette activité de recherche est de developper et d'explorer ce type de plateforme pour des applications en optique quantique et en information quantique. Plus

5. Des guides d'ondes à cristal photonique avec des indices de groupe plus élevés peuvent être aisément fabriqués. Néanmoins, on évitera cette situation où $n_g \geq 20$ car la propagation devient très sensible aux imperfections technologiques et les pertes optiques deviennent non négligeables.

concrètement, nous concevrons et fabriquerons des guides optiques à cristal photonique ayant des modes lents compatibles avec les atomes de Rubidium. Puis, nous piégerons un ensemble d'atomes de Rubidium proches ($\sim 100\,\mathrm{nm}$) des guides d'ondes, comme le montre la Fig. 31. Enfin, nous réaliserons un interrupteur optique à photon unique basé sur l'interaction forte entre les atomes de Rubidium et les modes lents se propageant des les guides.

Optique quantique intégrée

Collaborations externes : Sebastien Tanzilli (INPHINI), Sorin Tascu (RAMTECH)

Collaborations externes naissantes : Arnan Mitchell, Andy Boes (RMIT, Melbourne)

Collaborations C2N : Nadia Belabas, Ariel Levenson, Lorenzo Procopio (Post-doc), David Barral (Post-doc), Laurent Vivien, Eric Cassan, Carlos Ramos

Mon travail de thèse a porté sur la manipulation du bruit quantique de la lumière pour l'information quantique. Malgré des activités différentes pendant mon post-doctorat en Allemagne et depuis mon recrutement au CNRS, l'optique quantique et l'information quantique sont restées pour moi des domaines de recherche de prédilection. Au coeur de ces domaines, la manipulation des propriétés fondamentales de la lumière au niveau quantique, notamment la superposition, le compression du bruit quantique et l'intrication quantique.

Depuis quelques années nous constatons l'emergence d'une nouvelle voie pour l'information quantique. Il s'agit de l'optique quantique intégrée où les interactions non linéaires sont engendrées efficacement dans des dispositifs compacts micrométriques, devenus disponibles grace aux avancées de la micro et de la nano fabrication.

L'intrication quantique et le principe de superposition constituent les fondements de l'information quantique. Leurs manipulations pour des applications en information quantique requiert d'aller au delà de deux dimensions comme cela se fait traditionnellement dans la majorité des protocoles actuels, manipulant par exemple les deux états de polarisation orthogonales d'un photon, ou bien les quadratures conjuguées, amplitude et phase, d'un champ électromagnétique.

En espace libre, aller vers des dimensions supérieures se fait au détriment de dispositifs expérimentaux complexes et de plus en plus encombrants comme celui représenté en figure 32. L'optique quantique intégrée permet de réduire considerable ces dispositifs quantiques. C'est la voie que nous avons choisi au C2N. En collaboration avec Nadia Belabas, nous travaillons depuis quelques années sur la manipulation des propriétés quantiques de la lumière et notamment la génération d'états quantiques présentant des intrications quantiques multimodes dans dispositifs intégrés.

En régime de variables continues, nous privilégions la voie Niobate de Lithium avec inversion de domaine périodique (PPLN) pour que la condition d'accord de phase soit vérifiée pour la génération de photons jumeaux dégénérés à 1560 nm. Le milieu non-linéaire est un guide d'onde en Niobate de Lithium ayant une largeur de l'ordre du micromètre ($\sim 6\,\mu\mathrm{m}$). En juxtaposant de telles guides, nous créons un couplage linéaire entre eux. Généralement la distance entre guides d'ondes est de l'ordre de la dizaine de micromètre. Pour de telles séparations, seul le mode à 1560 nm se couple vers d'autres guides. L'interaction non linéaire

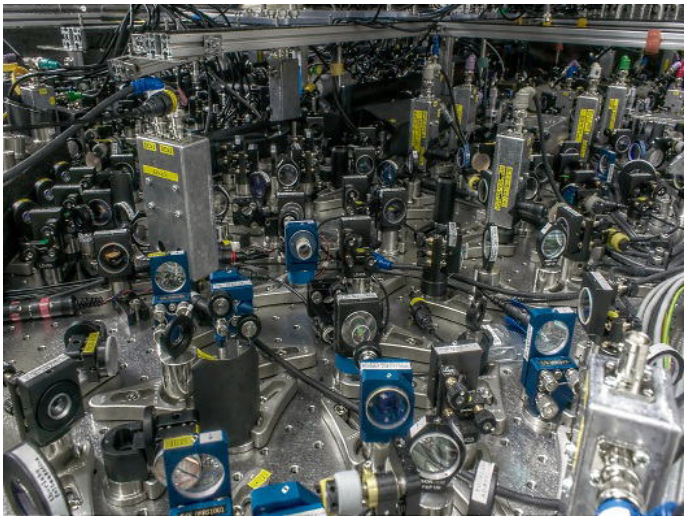

FIGURE 32 – Dispositif experimental typique d'optique quantique en espace libre.

et le couplage linéaire entre guides forment une interaction indissociable qui va au-delà de ce que peuvent offrir les système classiques – interactions non linéaires suivies de lames séparatrices – en espace libre. Comme le montre, nos résultats recents, les guides couplés offrent une nouvelle plateforme compacte pour la génération de N modes intriqués où N est le nombre de guides. L'utilisation de cette plateforme "quantique" compatible telecom, par le choix de la longueur d'onde, avec les dispositifs existants offre une nouvelle ressource puissante pour le communication quantique.

Nous assistons également depuis quelques années à l'émergence d'une nouvelle plateforme technologique à base de Niobate de Lithium, permettant d'obtenir des guide d'ondes nanométriques. Contrairement aux guides conventionnels obtenus par diffusion, les nouveaux guides sont obtenus par la gravure directe du substrat Niobate de Lithium. Les avancées technologiques dans ce domaine résident dans la fabrication de substrats de grande qualité ayant une épaisseur inférieure à 900 nm sur une plateforme Si/SiO_2, la gravure du Niobate de lithium sur quelques centaines de nanomètres pour former les guides, et la réalisation d'inversions de domaines pour l'accord de phase avec des périodicités de l'ordre de 5 μm, soit un facteur 3 plus petit que les périodes des guides conventionnels. sLes nouveaux guides ont des largeurs inférieures au micromètre et offrent donc un meilleur confinement modal.

L'effet non linéaire dans les guides, le couplage linéaire entre guides adjacents, et l'exploitation des propriétés electro-optiques du Niobate de Lithium, font de ses guides non linéaires nanométriques des dispositifs prometteurs pour l'information quantique.

L'exploration de cette nouvelle voie fait partir de mon programme de recherche. A cet effet, j'ai entamé une nouvelles collaboration avec Arnan Mitchell et Andy Boes du RMIT à Melbourne pour la réalisation d'une plateforme de nanoguides PPLN couplés pour l'information quantique.

L'information quantique en régime de variables discrètes, c'est à dire au niveau du photon unique, est abordée quant à elle dans l'espace des fréquences. Usuellement, l'information est traitée en manipulant des bits quantiques à deux dimensions, les qubits, où les deux états

sont par exemple les états de polarisation orthogonales du photon. Le qubit peut être aussi obtenu en utilisant comme états deux fréquences optiques que peut prendre le photon. L'avantage est de pouvoir augmenter facilement l'espace de Hilbert en utilisant une base à N fréquences pour manipuler des qudits et étendre ainsi la dimension des systèmes de calcul et de simulation quantiques les rendant plus rapides ou pour augmenter la sécurité des systèmes de communications quantiques.

Nos activités ce concentrent sur la generation de ces qudits dans l'espace de fréquences dans des microresonateurs en anneaux où les modes longitudinaux constituent les états propres de la base des fréquences. Les microresonateurs sont fabriqués en Si afin de réaliser le mélange à quatre ondes aux longueurs d'ondes télécom. Lorsqu'un faisceau pompe excite un mode de résonance, une paire de photons est générée dans les modes adjacents de part et d'autre de la pompe de telle sorte à ce que l'énergie soit conservée durant l'interaction. Dans le régime de photon unique, le photon signal et le photon idler seront dans l'état quantique,

$$|\psi\rangle = \sum_k c_k \, |s_k, i_k\rangle \, , \tag{17}$$

à la fois superposition entre plusieurs modes (états) de fréquence et correspondance entre mode signal et mode idler.

Les enjeux scientifiques et technologiques sont importants. En effet, manipuler des photons codés en fréquence aux longueurs d'ondes télécom est attractif car cela est compatible avec les dispositifs et les réseaux télécom classiques actuels et peuvent être aisément obtenus dans des dispositifs intégrés, eux aussi compatibles télécom, en Si, en SiN, ou encore en GaInP, beaucoup plus stable, reproductible et dont la dimension est évolutive.

Ainsi, la génération et la manipulation d'états "fréquences" photonique aux longueurs d'ondes télécom sur des plateformes intégrées est très prometteuse pour l'information quantique.

Depuis quelques années, nous travaillons activement sur la génération efficaces de photons codés en fréquence, et sur leurs manipulations dans des protocoles d'information quantique et des démonstrations de compréhension d'un des fondements de la mécanique quantique : le principe de superposition d'ordre causal d'opérateurs unitaires agissant sur état quantique. Cette activité de recherche est portée par ma collègue Nadia Belabas, mais c'est avec entrain que je participe à la construction de cette activité, en apportant tout particulièrement mes connaissances théoriques et expérimentales en optique quantique en général et en variables continues en particulier.

Production scientifique

Revues à comité de lecture

1. K. Bencheikh, O. Lopez, I. Abram, et J.A. Levenson, “Improvement of photodetection quantum efficiency by noiseless optical preamplification,” Applied Physics Letters **66**, 399 (1995).
2. K. Bencheikh, E. Huntziger, et J.A. Levenson, “Quantum noise reduction in quasi phase matched optical parametric amplification,” Journal of the Optical Society of America B **12**, 847 (1995).
3. K. Bencheikh, J.A. Levenson, P. Grangier, et O. Lopez, “Quantum nondemolition demonstration via repeated backaction evading measurements,” Physical Review Letters **75**, 3422 (1995).
4. K. Bencheikh, C. Simonneau, et J.A. Levenson, “Cascaded amplifying quantum taps : a robust noiseless optical bus,” Physical Review Letters **78**, 34 (1997).
5. J.A. Levenson, K. Bencheikh, “Repeated quantum nondemolition measurements,” Applied Physics B **64**, 193 (1997).
6. J.A. Levenson, K. Bencheikh, D.J. Lovering, P Vidakovic, et C. Simonneau, “Quantum noise in optical parametric amplification : a means to achieve noiseless optical functions,” Quantum and Semiclassical Optics **9**, 221 (1997).
7. R. Al-Tahtamouni, K. Bencheikh, R. Storz, K. Schneider, M. Lang, J. Mlynek, et S. Schiller, “Long-term stable operation and absolute frequency stabilization of a doubly-resonant optical parametric oscillator,” Applied Physics B **66**, 733 (1998).
8. K. Bencheikh, R. Storz, K. Schneider, M. Lang, J. Mlynek, et S. Schiller, “Absolute frequency stabilization of a continuous-wave optical parametric oscillator to the sub-kHz level,” Trends in Optics and Photonics, Advenced Solid State Lasers **19**, 392 (1998).
9. T. Symul, K. Bencheikh, D. Lovering et J.A Levenson, “All optical travelling wave modulation inverter,” Electronics Letters **36**, 1406 (2000).
10. T. Symul, K. Bencheikh, J.A. Levenson, D. Eger et M. Oron, “Intensiy-dependent parametric amplification for traveling-wave signal processing,” Optics Letters **25**, 1585 (2000).
11. T. Petelski, R.S. Conroy, J. Mlynek, K. Bencheikh et S. Schiller, “All solid-state, tunable, single-frequency source of yellow light for high-resolution spectroscopy,” Optics Letters **26**, 1013 (2001).

12. K. Bencheikh, T. Symul, A. Jankovic et J.A. Levenson, “Quantum key distribution with continuous variables,” Journal of Modern Optics **48**, 1903 (2001).
13. E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, J. A. Levenson, et V. Rouget, “Ultraslow light propagation in an inhomogeneously broadened rare-earth ion-doped crystal,” Physical Review Letters **95**, 143601 (2005).
14. K. Bencheikh et J.A. Levenson, “Plus lente que le son dans la matière,” Dossier Pour La Science **53**, 48 (2006).
15. O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, Y. Le Du, E. Baldit, P. Monnier, et K. Bencheikh, “Hyperfine interaction of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 : a study by electron paramagnetic resonance spectroscopy,” Physical Review B **74**, 214409 (2006).
16. K. Bencheikh, F. Gravier, J. Douady, J.A. Levenson, et B. Boulanger, “Triple photons : a challenge in nonlinear and quantum optics,” Comptes Rendus Physique **8**, 206 (2007).
17. O. Guillot-Noël, P. Goldner, Y. Le Du, E. Baldit, P. Monnier, et K. Bencheikh, “Electron paramagnetic resonance spectroscopy of Er^{3+} :Y_2SiO_5 for coherent optical applications,” Journal of Alloys Compounds **451**, 62 (2008).
18. E. Baldit, S. Briaudeau, P. Monnier, K. Bencheikh, et J.A. Levenson, “Light propagation in a solid doped with erbium ions : from ultraslow light to superluminal regime,” Comptes Rendus Physique **10**, 927 (2009).
19. E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, S. Briaudeau, J.A. Levenson, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, et P. Goldner, “Identification of Lambda-like systems in Er^{3+} :Y_2SiO_5 and observation of electromagnetically induced transparency,” Physical Review B **81**, 144303 (2010).
20. K. Bencheikh, E. Baldit, S. Briaudeau, P. Monnier, J.A. Levenson, et G. Mélin, “Slow light propagation in a ring erbium-doped fiber,” Optics Express **18**, 25642 (2010).
21. S. Richard, K. Bencheikh, B. Boulanger, et J.A. Levenson, “Semiclassical model of triple photons generation in optical fibers,” Optics Letters **36**, 3000 (2011).
22. K. Bencheikh, S. Richard, G. Mélin, G. Krabshuis, F. Gooijer, et J.A. Levenson, “Phase-matched third-harmonic generation in highly germanium-doped fiber,” Optics Letters **37**, 289 (2012).
23. A. Dot, B. Boulanger, K. Bencheikh, et J.A. Levenson, “Quantum theory analysis of triple photons generated by a $\chi^{(3)}$ process,” Physical Review A **85**, 023809 (2012).
24. A. Dot, A. Borne, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, K. Bencheikh, et J.A. Levenson, “Energetic and spectral properties of triple photon downconversion in a phase-matched $KTiOPO_4$ crystal,” Optics Letters **37**, 2334 (2012).
25. Y. Dumeige, A. M. Yacomotti, P. Grinberg, K. Bencheikh, E. Le Cren, et J.A. Levenson, “Microcavity-quality-factor enhancement using nonlinear effects close to the bistability threshold and coherent population oscillations,” Physical Review A **85**, 063825 (2012).
26. S. Haddadi, L. Le Gratiet, I. Sagnes, F. Raineri, A. Bazin, K. Bencheikh, J.A. Levenson, et A.M. Yacomotti, “High quality beaming and efficient free-space coupling in L3 photonic crystal active nanocavities,” Optics Express **20**, 18876 (2012).

27. P. Grinberg, K. Bencheikh, M. Brunstein, A. M. Yacomotti, Y. Dumeige, I. Sagnes, F.Raineri, L. Bigot, et J. A. Levenson, “Nanocavity linewidth narrowing and group delay enhancement by slow light propagation and nonlinear effects”, Physical Review Letters **109**, 113903 (2012).
28. P. Hamel, P. Grinberg, C. Sauvan, P. Lalanne, A. Baron, A. M. Yacomotti, I. Sagnes, F. Raineri, K. Bencheikh, and J. A. Levenson, “Coupling light into a slow-light photonic-crystal waveguide from a free-space normally-incident beam," Optics Express **21**, 15144 (2013).
29. A. Bornel, T. Katsura, C. Félix, B ; Doppagne, P. Segonds, K. Bencheikh, J.A. Levenson, et B. Boulanger, “Anisotropic analysis of third-harmonic generation in a germanium-doped silica optical fiber", Optics Letters **40**, 982 (2015).
30. A. Borne, T. Katsura, C. Félix, B. Doppagnea, P. Segonds, K. Bencheikh, J.A. Levenson, et B. Boulanger, “Ince-gauss based multiple intermodal phase-matched third-harmonic generations in a step-index silica optical fiber", Optics Communications **358**, 160 (2016).
31. V. Huet, A. Rasoloniaina, P. Guillemé, P. Rochard, P. Féron, M. Mortier, J.A. Levenson, K. Bencheikh, A. Yacomotti, et Y. Dumeige, “Millisecond Photon Lifetime in a Slow-Light Microcavity", Physical Review Letters **116**, 133902 (2016).
32. D. Barral, N. Belabas, L. M. Procopio, V. D’Auria, S. Tanzilli, K. Bencheikh, et J. A. Levenson, “Continuous-variable entanglement of two bright coherent states that never interacted”, Physical Review A **96**, 053822 (2017).
33. D. Barral, K. Bencheikh, V. D’Auria, S. Tanzilli, N. Belabas, et J. A. Levenson, “Minimum resources for versatile continuous-variable entanglement in integrated nonlinear waveguides”, Physical Review A **98**, 1 (2018).
34. E. A. R. González, A. Borne, B. Boulanger, J. A. Levenson, et K. Bencheikh, “Continuous -variable triple-photon states quantum entanglement", Physical Review Letters **120**, 043601 (2018).
35. D. Barral, K. Bencheikh, N. Belabas, et J. A. Levenson, ‘Zero supermode-based multipartite entanglement in $\chi^{(2)}$ nonlinear waveguide arrays",Physical Review A **99**, 051801(R) (2019).
36. D. Barral, K. Bencheikh, P. J. Olver, N. Belabas, et J. A. Levenson, “Symmetry-based analytical solutions to the $\chi^{(2)}$ nonlinear directional coupler", Physical Review E **99**, 42211 (2019).
37. I. Saber, R. Boddeda, F. Rainerie, D. Shanchez, G. Beaudoin, I. Sagnes, Q. Glorieux, A. Bramati, J.A. Levenson, et K. Bencheikh, “Photonic crystal nanobeam cavities with optical resonances around 800 nm", Journal of the Optical Society of America B **36**, 1823 (2019).
38. D. Barral, N. Belabas, K. Bencheikh, et J. A. Levenson, “Coupling quasi-phase-matching : Entanglement buildup in $\chi^{(2)}$ nonlinear-waveguide arrays", Physical Review A **100**, 013824 (2019).
39. D. Barral, M. Walschaers, K. Bencheikh, V. Parigi, J. A. Levenson, N. Treps, et N. Belabas, “Quantum state engineering in arrays of nonlinear waveguides", Physical Review A **102**, 043706 (2020).

40. D. Barral, M. Walschaers, K. Bencheikh, V. Parigi, J. A. Levenson, N. Treps, et N. Belabas, “A versatile photonic entanglement synthesizer in the spatial domain", Physical Review Applied **14**, 044025 (2020).
41. D. Zhang, Y. Cai, Z. Zheng, D. Barral, Y. Zhang, M. Xiao, et K. Bencheikh, “Non-Gaussian Nature and Entanglement of Spontaneous Parametric Nondegenerate Triple-Photon Generation", Physical Review A **103**, 013704 (2021).
42. D. Barral, K. Bencheikh, J. A. Levenson, et N. Belabas, “Scalable Multimode Entanglement Based on Efficient Squeezing of Propagation Eigenmodes", Physical Review Research. **3**, 013068 (2021).

Faits marquants

K. Bencheikh et Ariel Levenson, “Plus lente que le son dans la matière", Dossier Pour La Science N. 53. Octobre 2006.

K. Bencheikh, “Des photons qui vivent 100 fois plus longtemps dans une nanocavité", Actualités Scientifiques. Institut de Physique CNRS (2012).

Reprise dans APS Physics du Phys. Rev. Lett. **116**, 133902 (2016). Synopsis : Photon’s Lifetime Extended. 29 Mars 2016, par Ana Lopes

N. Belabas, K. Bencheikh, D. Barral, A. Levenson, et X. Solinas, “Le bruit quantique au service de l’information quantique intégrée", La Revue de l’Electricité et de l’Electronique REE 86 (2019).

Conférences invitées dans des congrès

J.A. Levenson et K. Bencheikh
Noiseless optical functions
International School Solid States Physics. Alusha, Ukraine. Août 1994.

K. Bencheikh
Traitement non destructif des signaux optiques
Séminaire sur la manipulation d’atomes par les lasers et applications, Université de Lille, France. Mai 1995.

J.A. Levenson et K. Bencheikh
Quantum noise in parametric amplification
Second order nonlinearities : from fundamentals to applications. Les Houches, France. Mai 1996.

K. Bencheikh, E. Baldit, P. Monnier, et J.A. Levenson
Slow light propagation in a rare-earth ion-doped crystal
International Conference on Transparent Optical Networks ICTON
Barcelone, Espagne. 5–7 Juillet 2005.

K. Bencheikh, E. Baldit, P. Monnier, et J.A. Levenson
Ralentissement de la lumière dans un solide par oscillation cohérente de population
9eme Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ 9)
Dijon, France. 7–9 Septembre 2005.

K. Bencheikh, E. Baldit, P. Monnier, S. Briaudeau, et J.A. Levenson
Effets cohérents dans un cristal dopé aux ions Er^{3+}
Colloque de la division de Physique Atomique, Moléculaire et Optique de la Société Française de Physique, Journées de Spectroscopie Moléculaire (PAMO-JSM)
Lille - Villeneuve d'Ascq, France. 7–10 Juillet 2008.

A. Dot, K. Bencheikh, B. Boulanger, J.A. Levenson, P. Segonds, and C. Félix
Triple photons generation : toward a new state of light
Non Linear Optics,
Hawaii, USA. 12–17 Juillet 2009.

E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, S. Briaudeau, et J.A. Levenson
Coherent effects in anErbium ion-doped crystal (Er^{3+} $:Y_2SiO_5$)
International Symposium for Young Researchers : Quantum Manipulation of Photons and Atoms
Beijing, Chine. 14–18 Octobre 2008.
Shanghai, Chine. 20–22 Octobre 2008.

K. Bencheikh
Coherent effects in an Erbium ion-doped crystal (Er^{3+} $:Y_2SiO_5$)
International Symposium on Optical Manipulation of Quantum Information in Solids (ISOM-QIS)
Paris, France. 25–28 Mai 2010.

K. Bencheikh
Coherent-Population-Oscillation-based slow light in Er^{3+}*-doped solids and semiconductors photonic crystals*
6eme workshop franco-russe sur les nanosciences and Nanotechnoligies (RFW 2010)
Paris, France. 13–15 Septembre 2010.

A. Dot, K. Bencheikh, B. Boulanger, J.A. Levenson, P. Segonds, C. Félix
Triplets de photons : de l'optique non linéaire à l'optique quantique
COLOQ, Marseille. 4-7 juillet 2011.

B. Boulanger, A. Dot, K. Bencheikh, J.A. Levenson, P. Segonds, C. Félix
Triple photons : a new state of light
International Laser Physics Workshop 2011, Sarajevo, Bosnia and Herzegovina. Juillet 11–15 2011.

B. Boulanger, A. Dot, K. Bencheikh, J.A. Levenson, P. Segonds, C. Félix
Triple photons : from nonlinear generation to quantum correlations

XXX URSI General Assembly and Scientific Symposium, Lasers Session, Istanbul, Turquie. Aout 13–20 2011.

K. Bencheikh
Coherent-Population-Oscillation-based slow light and semiconductors photonic crystals
The Second France-Japan Workshop on Nanophotonics
Toba, Japon. 7–9 Novembre 2011.

K. Bencheikh
Slow light propagation in 2D semiconductor photonic crystals
The Fifth "Rio de la Plata" Workshop on Laser Dynamics and Nonlinear Photonics
Colonia del Sacramento, Uruguay. 6–9 Décembre 2011.

B. Boulanger, A. Dot, A. Borne, P. Segonds, K. Bencheikh, J.A. Levenson, S. Richard
$\chi^{(3)}$ Third Harmonic Generation and Triple Photon Generation
Photonics West, San Francisco. 21–26 Janvier 2012.

K. Bencheikh
Enhancement of a nanocavity lifetime : slow light and nonlinear dispersion
International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON)
Coventry, Angleterre. 2–5 Juillet 2012.

K. Bencheikh, P. Grinberg, Y. Dumeige, M. Brunstein, Ph. Hamel, S. Haddadi, A.M. Yacomotti, I. Sagnes, F. Raineri, J.A. Levenson *Cavités à fort facteur de qualité, guides à modes lents et lumière lente par interaction non linéaire*
Journées Nationales Nanosciences et Nanotechnologies (J3N)
Marseille, France. 4–6 Novembre 2013.

B. Boulanger, P. Segonds, Y. Petit, S. Joly, K. Bencheikh, J.A. Levenson
Recent advances in classical and quantum crystal optics
French Russian German Laser Symposium (FRG-LS), Besançon. 4-7 Novembre 2013.

K. Bencheikh
Quantum theoretical aspects of triple-photon states produced by a khi(3) process
The Sixth "Rio de la Plata" Workshop on Laser Dynamics and Nonlinear Photonics
Montevideo, Uruguay. 9–12 Décembre 2013.

B. Boulanger, A. Borne, K. Bencheikh, J.A. Levenson, C. Felix, P. Segonds
New state of light from third order parametric down conversion processes
IEEE Photonics Conference, San Diego. 12-16 Octobre 2014.

B. Boulanger, A. Borne, T. Katsura, C. Félix, P. Segonds, K. Bencheikh, J.A. Levenson
Third harmonic generation : a unique probe for symmetry analysis of isotropic media under strain
Non Linear Optics, Hawaii, USA. 21-26 Juillet 2015.

B. Boulanger, A. Borne, C. Félix, V. Boutou, P. Segonds, K. Bencheikh, J.A. Levenson
Triple photons
International Conference OPAL2015, Alger, Algérie. Décembre 13–15 2015.

E. A. Rojas Gonzales, A. Borne, B. Boulanger, J.A. Levenson, K. Bencheikh.
Counterintuitive behavior of triple-photon states entanglement in continuous variables regime
Congrès de la Société Française d'Optique,Toulouse, 3-6 Juillet 2018.

K. Bencheikh, N. Belabas, L. Procopio, D. Barral, J.A. Levenson
Multipartite Entanglement in nonlinear waveguide arrays
The Australian and New Zealand Conferences on Optics and Photonics (ANZCOP), Melbourne, Australie. 8-12 Décembre 2019.

Congrès

J.A. Levenson et K. Bencheikh
Noiseless optical amplification
International Quantum Electronics Conference (IQEC)
Amsterdam, Pays-Bas. Septembre 1994.

K. Bencheikh, J.A. Levenson, P. Grangier et O. Lopez
Repeated back action evading measurements of a noiseless optical bus
Symposium Franco-Israélien sur l'optique non linéaire et l'optique quantique (FRISNO)
Savoie, France. Juin 1996.

J.A. Levenson, K. Bencheikh, Ph. Grangier et O. Lopez
Noiseless optical bus
Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS)
Anaheim, USA. Juin 1996.

K. Bencheikh et J.A. Levenson
Cascaded twin photons for quantum optical tapping
Conference on Lasers and Electro-optics (CLEO/Europe)
Hambourg, Allemagne. Septembre 1996.

K. Bencheikh, J.A. Levenson, P. Grangier et O. Lopez
Bus optique sans bruit
Colloque sur les lasers et l'optique quantique (COLOQ)
Ecole polytechnique, Palaiseau, France. Novembre 1996.

K. Bencheikh, R. Storz, K. Schneider, K. Jäck, M. Lang, J. Mlynek, et S. Schiller
Absolute frequency stabilization of a continuous-wave optical parametric oscillator to the sub-kHz level
Advanced Solid State Lasers (ASSL)
Coeur d'Alene, Idaho, USA. Février 1998.

R. Al-Tahtamouni, K. Bencheikh, R. Storz, K. Schneider, M. Lang, K. Jäck, G. Breitenbach, S. Schiller, et J. Mlynek
Stabilisation en fréquence d'oscillateurs paramétriques doublement résonants
Conférence de la Société Allemande de Physique
Constance, Allemagne. Mars 1998.

K. Bencheikh, R. Storz, K. Schneider, M. Lang, J. Mlynek, et S. Schiller
Absolute frequency stabilization of a continuous-wave optical parametric oscillator to the sub-kHz level
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe)
Glasgow, Ecosse. Septembre 1998.

K. Bencheikh, T. Symul, A. Jankovic et J.A. Levenson
Quantum cryptography with continues variables
Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS)
Baltimore, USA, Mai 2001.

E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, A. Apetrei, V. Rouget et J. A. Levenson
Towards giant nonlinear effects in rare earth ions doped crystals
Quantum Logic and Communications summer school
Cargèse, Corse. Août 2004.

K. Bencheikh, E. Baldit, V. Rouget, P. Monnier et J.A. Levenson
Ultraslow light propagation in an erbium-ions-doped crystal
Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS)
Baltimore, USA. Mai 2005.

K. Bencheikh, E. Baldit, P. Monnier et J.A. Levenson
Ultraslow light propagation in Rare-earth ion-doped crystal
International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON)
Barcelone, Espagne. Juillet 2005.

E. Baldit, S. Briaudeau, P. Monnier, J. A. Levenson, K. Bencheikh
Hole burning spectroscopy and coherent effect in rare-earth $^{167}Er^{3+}$*-doped* Y_2SiO_5 *crystal*
Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS)
Long Beach, Californie, USA. Mai 2006.

E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier et J. A. Levenson
Holeburning spectrocopy in $Er^{3+}:Y_2SiO_5$
Conference on Hole Burning, Single Molecule and Related Spectroscopies : Science and Applications (HBSM)
Aussois, France. 24–29 Juin 2006.

O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, Y. Le Du, E. Baldit, P. Monnier et K. Bencheikh
Electron Paramagnetic Resonance determination of rare earth hyperfine structure for coherent optical applications. Case of $Er^{3+}:Y_2SiO_5$

Conference on Hole Burning, Single Molecule and Related Spectroscopies : Science and Applications (HBSM)
Aussois, France. 24–29 Juin 2006.

K. Bencheikh, E. Baldit, S. Briaudeau, P. Monnier et J. A. Levenson
From hole burning spectroscopy to coherent effects in Er^{3+} *:*Y_2SiO_5
European Optical Society (EOS) annual meeting
Paris, France. 16–19 Octobre 2006.

E. Baldit, K. Bencheikh, S. Briaudeau, P. Monnier et J. A. Levenson
From spectral hole-burning spectroscopy to coherent effects in Er :YSO crystal
European Materials Research Society (EMRS) Spring meeting
Strasbourg, France. 28 Mai–1 Juin 2007.

E. Baldit, K. Bencheikh, S. Briaudeau, P. Monnier et J. A. Levenson
De la spectroscopie aux effets cohérents dans le Er^{3+} *:*Y_2SiO_5
Colloque sur les lasers et l'optique quantique (COLOQ)
Grenoble, France. 2–5 Juillet 2007.

A. Dot, K. Bencheikh, B. Boulanger, J.A. Levenson, P. Segonds, A. Gérardin, C. Félix
First Theoretical and Experimental Demonstration of Quantum Correlations of Triple Photons
Postdeadline Paper APDP3, ASSP, San Diego, USA. 1–3 Février 2010.

A. Dot, K. Bencheikh, B. Boulanger, J.A. Levenson, P. Segonds, A. Gérardin, C. Félix
Triple photons : a new challenge for parametric nonlinear crystal optics
Advances in Molecular Nonlinear Optics : Information Technology and Life Sciences" (AMARIS10), Cachan. 24–28 Mai 2010.

A. Dot, K. Bencheikh, B. Boulanger, J.A Levenson, P. Segonds, C. Félix
Theoretical and experimental demonstrations of triple photon quantum correlations
7th European-Israeli Workshop (EIW 2010), Lyon, France. 8–9 Décembre 2010.

P. Grinberg, K Bencheikh, A. Giacomotti, A. Levenson, P. Lalanne, et C. Sauvan
Nonlinear Slow light propagation in slow-modes Photonic Crystal waveguides
Symposium Franco-Israélien sur l'optique non linéaire et l'optique quantique (FRISNO)
Aussois, France. 28 Mars–1 Avril 2011.

A. Dot, K. Bencheikh, B. Boulanger, J.A. Levenson, P. Segonds, et C. Félix
Triple photon quantum correlations
Symposium Franco-Israélien sur l'optique non linéaire et l'optique quantique (FRISNO)
Aussois, France. 28 Mars–1 Avril 2011.

P. Grinberg, J.A. Levenson, A.M. Yacomotti, K. Bencheikh, P. Féron, et Y. Dumeige
Population oscillation induced slow light in a nonlinear photonic crystal microcavity
Advances in Slow and Fast Light – SPIE Photonics West
San Fransisco, Californie, USA. 24–26 Janvier 2012.

K. Bencheikh
Enhancement of a nanocavity lifetime : slow light and nonlinear dispersion
Nonlinear Photonics, OSA Optics & Photonics Congress
Colorado Springs, Colorado, USA. 17–21 Juin 2012.

P. Grinberg, K. Bencheikh, M. Brunstein, A.M. Yacomotti, Y. Dumeige, et J.A. Levenson
Slow light propagation due to nonlinear interaction in a 2D semi-conductor photonic crystal cavity
SPIE Photonics Europe
Bruxelles, Belgique. 16–19 Avril 2012.

P. Grinberg, K. Bencheikh, M. Brunstein, A.M. Yacomotti, Y. Dumeige, et J.A. Levenson
Coherent population oscillations in photonic crystal nonlinear microcavity
Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG)
Lyon, France. 10–12 Juillet 2012.

A. Borne, A. Dot, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, K. Bencheikh, J.A. Levenson.
Energetic and spectral properties of triple photon down-conversion in a phase-matched KTiOPO4 crystal
Nonlinear Photonics EOS Annual Meeting, Aberdeen, Royaume Uni. 25–28 September 2012.

A. Borne, A. Dot, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, K. Bencheikh, J.A. Levenson.
Triple photons : a new chapter of nonlinear and quantum optics
50 Years of Non Linear Optics International Symposium, Barcelone, Espagne. 8 –10 October 2012.

J. A. Levenson, P. Grinberg, M. Brunstein, K. Bencheikh, A. Yacomotti, I. Sagnes, F. Raineri, and Y. Dumeige *Coherent and Dynamic Nonlinear Interactions in 2D Photonic Crystal Nano-cavities.*
Latin America Optics & Photonics Conference (LAOP)
Sao Sebastiao, Brésil. 10–13 Novembre 2012.

P. Grinberg, Y. Dumeige, M. Brunstein, Ph. Hamel, S. Haddadi, A.M. Yacomotti, I. Sagnes, F. Raineri, K. Bencheikh, J.A. Levenson *Lumière lente dans les cristaux photoniques*
Colloque sur les Lasers et l ?Optique Quantique (COLOQ 13)
Villetaneuse, France. 8–11 Juillet 2013.

K. Bencheikh, P. Grinberg, A.M. Yacomotti, P. Hamel, F. Raineri, I. Sagnes, Y. Dumeige, J.A. Levenson *Photonic crystal nanocavity lifetime enhancement by slow light propagation and carrier induced nonlinearities*
The 10th Conference on Lasers and Electo-Optics Pacific Rim (CLEO–PR)
Kyoto, Japan. 30 Juin–4 Juillet 2013.

V. Huet, A. Rasoloniaina, M. Mortier, K. Bencheikh, A. Yacomotti, J.A. Levenson, P. Féron, Y. Dumeige
Ultra-slow light in erbium-doped whispering gallery mode microresonators
SPIE Photonics West-OPTO San Francisco, USA. 7-12 Février 2015.

V. Boutou, B. Boulanger, A. Borne, C. Félix, P. Segonds, K. Bencheikh, J.A Levenson
Third Harmonic Generation : a unique tool for characterizing the anisotropy of an optical fiber
7th International Symposium on Optical Materials, Lyon, France. 29 Février – 4 Mars, 2016.

J.-B. Ceppe, V. Huet, M. Mortier, Ph. Rochard, J. A. Levenson, K. Bencheikh, A. Yacomotti, P. Féron, Y. Dumeige
Physics and applications of active high-Q microcavities
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), San Jose, USA. Mai 2018.

Séminaires et workshops

J.A. Levenson, K. Bencheikh, Ph. Grangier et O. Lopez
Repeated quantum measurements
Workshop on quantum nondemolition measurement, Constance, Allemagne. Mars 1996.

K. Bencheikh
Traitement non destructif des signaux optiques
Université Nice-Sophia Antipolis, Nice, France, Novembre 1996.

K. Bencheikh
Traitement non destructif des signaux optiques
Université de Besançon. France, Décembre 1996.

K. Bencheikh, E. Baldit, P. Monnier et J.A. Levenson
Slow light propagation in a rare-earth ion-doped crystal
International Workshop on Atoms and Photons for Quantum Information
Shanghai, Chine. 21 - 30 Juillet 2005.

K. Bencheikh
Fort ralentissement de la lumière dans un solide dopé à l'Erbium
Séminaire au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures LPN
Marcoussis, France. 9 Novembre 2005.

K. Bencheikh, E. Baldit, P. Monnier et J. A. Levenson
Coherent effects in an Erbium-doped crystal ($^{167}Er^{3+}:Y_2SiO_5$)
Workshop on Rare-Earth-ion-Doped Solids for Quantum Information
Paris, France. Avril 2007.

K. Bencheikh, E. Baldit, P. Monnier et J. A. Levenson
Coherent effects in an Erbium-doped crystal ($^{167}Er^{3+}:Y_2SiO_5$)
France-DOE (Department of Energy) US Nanoscience Workshop, Argonne (USA). Juin 2007.

Annexe : Articles

Cette annexe contient les versions PDF de certains articles en relation avec le travail de recherche décrit dans ce manuscrit.

Hyperfine interaction of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 : An electron paramagnetic resonance spectroscopy study

O. Guilloet-Noël, Ph. Goldner, Y. Le Du, E. Baldit, P. Monnier and K. Bencheikh

Physical Review B **74**, 214409 (2006)

Hyperfine interaction of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5: An electron paramagnetic resonance spectroscopy study

O. Guillot-Noël,* Ph. Goldner, and Y. Le Du
Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris, CNRS-UMR 7574, ENSCP, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05, France

E. Baldit, P. Monnier, and K. Bencheikh
Laboratoire de Photonique et Nanostructures, CNRS-UPR 20, Route de Nozay, 91 460 Marcoussis, France
(Received 11 July 2006; revised manuscript received 23 October 2006; published 11 December 2006)

Electron paramagnetic resonance (EPR) spectroscopy of rare earth ions in crystals is a powerful tool to analyze the hyperfine structure of the rare earth ground state. This can be useful for coherent spectroscopy and quantum information applications where the hyperfine structure of the electronic levels is used. In this work, we give a detailed analysis of the hyperfine structure of the ground state $[^4I_{15/2}(0)]$ of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5. The electronic Zeeman, hyperfine, and quadrupole matrices are obtained from angular variations of the magnetic field in three orthogonal crystal planes. An excellent agreement is obtained between experimental and simulated magnetic field positions and relative intensities of EPR lines.

DOI: 10.1103/PhysRevB.74.214409 PACS number(s): 76.30.−v, 31.30.Gs

I. INTRODUCTION

Hyperfine levels of rare earth ions are commonly used to perform coherent spectroscopy experiments, like hole burning and photon echo, thanks to the long lifetime (up to minutes) of these levels at low temperature (<4 K).[1] They can also exhibit a coherence time (T_2) of the order of several milliseconds, making these systems interesting for quantum manipulations. For example, a hyperfine coherence lifetime of 82 ms has been reported in $Pr^{3+}:Y_2SiO_5$.[2] By the application of a specific pulse sequence on a nuclear-quadrupole transition of Pr^{3+} ions, an increase of up to 30 s has been found for this coherence time.[3] Rare-earth-ion-doped crystals are thus promising candidates in the quest for macroscopic quantum effects like quantum memories[4] and quantum repeaters.[5] In both applications, quantum storage, which aims at transferring quantum states of photons into atomic ensembles, is necessary. This is possible with atomic species in which a three-level Λ system can be built.[6] A three-level Λ system consists of two levels, which can both be coupled by light fields to a third one. The photon to be stored is resonant with one transition and a second light field with the other one. Intensity variation of the latter allows photons to be trapped and released by using electromagnetically induced transparency (EIT) for example.[6] To get efficient trapping, the lifetime of the coherences (optical and hyperfine coherences) between the three levels of the Λ system needs to be long. The hyperfine coherence time defines the storage time of the quantum memory. Storage has been demonstrated for classical and quantum light in a number of systems.[4,7,8] In $Pr^{3+}:Y_2SiO_5$, light was slowed down and even stopped during a time span greater than one second.[9] In this case, the three-level system is made of the hyperfine levels of the ground $^3H_4$ multiplet and of the excited $^1D_2$ multiplet of Pr^{3+} ions.

Apart from the required long coherence time, the two optical transitions between the two legs of the Λ should have similar intensities. This condition is satisfied if the nuclear spin projection M_I is not a good quantum number since optical transitions are limited by the $\Delta M_I=0$ selection rule. In order to find an efficient three-level Λ system with hyperfine levels of rare earth ions, some mixing between the $|M_I\rangle$ states has to occur. There are two ways to induce mixing in the nuclear spin projections: (i) to find a host where the site symmetry of the rare earth is low and/or (ii) to apply an external magnetic field. In the former case, hyperfine interaction in low symmetry sites induces mixing between $|M_I\rangle$ and $|M_I\pm1\rangle$ states and quadrupole interaction mixes state $|M_I\rangle$ and $|M_I\pm2\rangle$. In the latter case, in previous works on Pr^{3+} and Tm^{3+} ions, we have shown theoretically and experimentally that an external magnetic field can induce very different nuclear spin projections by mixing ground and excited levels and thus relaxing the $\Delta M_I=0$ selection rule.[10–12]

In the future, quantum networks will be composed of photons as natural qubit carriers and atomic systems as nodes for processing and storing the optical information. Finding suitable atomic systems and protocols meeting the current telecommunication technologies appears as a crucial point. In this perspective, Er^{3+} ion belongs to the family of rare earths showing very sharp optical resonances with long-lived excited states and long optical coherence times. Among all the rare earth ions, non-Kramers ions with an even number of $4f$ electrons present the longest coherence lifetime without any magnetic field.[13] However, under an external magnetic field, Kramers ions, like Er^{3+}, can also be of interest. An optical coherence lifetime of 4.38 ms has been obtained in $Er^{3+}:Y_2SiO_5$ under magnetic field corresponding to the longest optical coherence time ever measured in any solid-state material.[14] Er^{3+} ion is an interesting Kramers ion as it emits around 1.5 μm. The presence of telecommunication optical fibers makes this wavelength suitable to transfer light qubits over long distances. Moreover, Er^{3+} ions present a hyperfine structure at zero magnetic field due to the ^{167}Er isotope (natural abundance 22.94%) with a nuclear spin $I=7/2$. A three-level Λ system can be built between the hyperfine levels of the ground $^4I_{15/2}$ multiplet and of the excited $^4I_{13/2}$

 ©2006 The American Physical Society

multiplet around 1.5 μm. Y_2SiO_5 has a monoclinic structure with $C2/c$ space group. Er^{3+} ions lie on two crystallographic sites with low-symmetry C_1 with seven and six oxygen neighbors. This low site symmetry induces strong mixing between the different nuclear spin projections. For all the above reasons, $Er^{3+}:Y_2SiO_5$ appears to be an interesting candidate for light processing and storing.

The first step toward coherent optical applications and quantum manipulation in this system is the determination of the hyperfine structure of the ^{167}Er isotope in Y_2SiO_5. Because of the very low site symmetry of the rare earth, each Kramers doublet of this isotope splits at maximum into 16 levels under the hyperfine and quadrupole magnetic interactions even without any external magnetic field. The hyperfine structure of Er^{3+} ions is thus very complex. As the hyperfine splittings (few hundreds of megahertz) are usually smaller than the optical inhomogeneous linewidth (few gigahertz), they can only be determined in the optical range by hole burning spectroscopy. However, due to the high value of the nuclear spin of the ^{167}Er isotope ($I=7/2$), hole burning spectra are very complex. If we consider that the hyperfine splittings are inside the inhomogeneous linewidth and if all the transitions are allowed, we have at maximum 2×120 side holes and 2×28 800 antiholes. In this very complex case, electron paramagnetic resonance (EPR) spectroscopy is a powerful tool to analyze the hyperfine structure of the ground Kramers doublet of the $^4I_{15/2}$ multiplet. Although limited to the ground state crystal field level, this technique has two main advantages over its optical counterpart. First, the inhomogeneous linewidth of the Zeeman transitions in rare earth ions is approximately three orders of magnitudes smaller than those observed in the optical domain. This allows one to observe very clearly splittings due to different interactions as the hyperfine and quadrupole ones. Moreover, by rotating a single crystal in the magnetic field, precise information on the site symmetry (including ground state irreducible representation), and also on the orientation of the different interactions can be easily retrieved. This can be used in order to optimize the hyperfine states mixing and the coherence time when an external magnetic field is applied.

Having determined the ground state hyperfine splitting by EPR, hole burning spectroscopy could then be used to retrieve the excited state hyperfine structure. Apart from the determination of hyperfine splittings for quantum applications, the EPR of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 provides an interesting case for the study of low-symmetry effects in electron paramagnetic resonance. Indeed, low-symmetry EPR data are difficult to interpret as the different interactions, the Zeeman interaction, the hyperfine interaction and the quadrupole interaction have noncoincident principal axes.[15] Moreover, under low site symmetry, second-order effects of hyperfine and quadrupole interactions can strongly modify the splitting between hyperfine transitions. To our knowledge, it is the first time that such a complete study of EPR spectra of Er^{3+} ions in low site symmetry is reported. Indeed, in the literature, very few examples of this type are studied. Only the **g** factor and the hyperfine interaction **A** are determined and very often the quadrupole interaction is neglected.[16]

The paper is arranged as follows. In Sec. II, we present the spin-Hamiltonian approach which is used to analyze the hyperfine splittings of the ground state of erbium as well as the fitting procedure used in this work. In Sec. III, the results and the spin-Hamiltonian parameters are presented and discussed.

II. SPIN HAMILTONIAN AND FITTING PROCEDURE

The free Er^{3+} ion has a $4f^{11}$ configuration with a $^{2S+1}L_J = {}^4I_{15/2}$ ground state. S, L, and J are the spin, orbital, and total momenta, respectively. In a crystal field of C_1 symmetry, the $J=15/2$ level splits into eight Kramers doublets (KDs) $|M_J|=15/2$, $13/2$, $11/2$, $9/2$, $7/2$, $5/2$, $3/2$, and $1/2$, M_J being the z component of J. Since only the lowest doublet is populated at liquid helium temperature, the system can be described by a fictitious spin $S=1/2$. Erbium has five even isotopes ^{162}Er, ^{164}Er, ^{166}Er, ^{168}Er, and ^{170}Er, with nuclear spin $I=0$ and a total natural abundance of 77.05%, and one isotope, ^{167}Er, with nuclear spin $I=7/2$ (natural abundance 22.95%). The EPR spectrum of Er^{3+} ions is expected to be composed of an intense central line due to even isotopes and a hyperfine pattern composed of at least eight "allowed" transitions for the odd isotope; "allowed" means that the EPR transition has the selection rules $\Delta M_S=\pm1$ and $\Delta M_I=0$. As the low site symmetry mixes all the nuclear spin projections, M_I is not a good quantum number anymore; however, it is simple to describe the EPR spectrum by means of allowed ($\Delta M_I=0$) and forbidden transitions ($\Delta M_I=\pm1,\pm2$). The spin Hamiltonian developed by Pryce[17] and Abragam and Pryce[18] using a modified perturbation theory is

$$H_{even}=\beta_e\mathbf{B}\cdot\mathbf{g}\cdot\mathbf{S} \tag{1}$$

for even isotopes and

$$H_{odd}=\beta_e\mathbf{B}\cdot\mathbf{g}\cdot\mathbf{S}+\mathbf{I}\cdot\mathbf{A}\cdot\mathbf{S}+\mathbf{I}\cdot\mathbf{Q}\cdot\mathbf{I}-\beta_n g_n\mathbf{B}\cdot\mathbf{I} \tag{2}$$

for the odd isotope. β_e is the electronic Bohr magneton, **B** is the external static magnetic field, **g** is the g-factor matrix, **A** is the hyperfine matrix, and **Q** is the electric quadrupole matrix. The quadrupole interaction is a symmetric traceless matrix. β_n is the nuclear magneton, and g_n is the nuclear g factor. $g_n=-0.1618$ for Er^{3+} ions.

The crystal used in our experiments is supplied by Scientific Materials Inc. A cube of 1 mm^3 is oriented by Laue x-ray diffraction along the three orthogonal optical extinction axes, $\boldsymbol{b}$, $\boldsymbol{D}_1$, and $\boldsymbol{D}_2$.[14] It is doped with 0.005 at. % of Er^{3+} ions. The EPR spectra of erbium-doped Y_2SiO_5 are shown in Fig. 1 for **B** parallel to $\boldsymbol{b}$ for example. The signals from the erbium ions in site 1 and site 2 are gathered. We use the notation of Refs. 14 and 19 site 1 (site 2) corresponds to Er^{3+} ions characterized by the 1536.48 nm (1538.90 nm) vacuum wavelength for the lowest $^4I_{15/2}$ to $^4I_{13/2}$ transitions.

The EPR spectra are composed of a narrow central line corresponding the even isotopes. A hyperfine pattern of $2I+1=8$ allowed hyperfine transitions ($\Delta M_I=0$ transitions which are indicated by a stick diagram on Fig. 1) is seen around the central line. Between each allowed hyperfine transition, pairs of forbidden transitions ($\Delta M_I=\pm1$ transitions, stick diagram on Fig. 1) are clearly observed. In a site of C_1 symmetry, the principal axes of each interaction **g**, **A**,

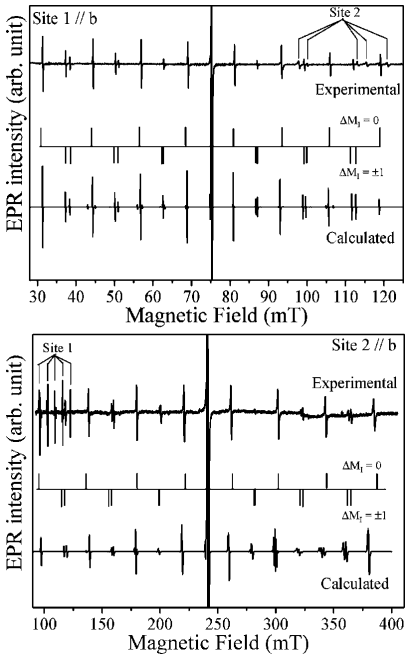

FIG. 1. Experimental and calculated EPR spectra at 7 K of Er^{3+} in Y_2SiO_5 for sites 1 and 2 with the magnetic field **B** parallel to the ***b*** axis. The spectra were recorded at 9.5 GHz with a microwave power of 20 mW.

Q are not coincident. The determination of **g**, **A**, and **Q** matrices with respect to a reference axis set is obtained from the angular variations of the experimental EPR spectra in three orthogonal crystal planes: $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_1)$, $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_2)$, and $(\boldsymbol{D}_1,\boldsymbol{D}_2)$. In the general case, **g** and **A** are asymmetric.[20] The asymmetric part of the **g** matrix can be eliminated by special spin operator transformation.[21] However, such an asymmetry has not be seen in our spectra and all matrices are taken symmetric. We have thus to determine 17 spin-Hamiltonian parameters: six for the **g** matrix, six for the **A** matrix, and only five for the **Q** matrix, which is a traceless matrix. The six **g**-factor matrix elements are obtained from the angular study of the central EPR line [Eq. (1)]. The other 11 parameters are obtained from angular variations of the allowed and forbidden transitions. Contrary to what is usually done, we cannot use a perturbative approach to analyze the hyperfine structure in the case of $Er^{3+}:Y_2SiO_5$. As the intensities of some forbidden hyperfine transitions are of the same order of magnitude as the allowed transitions (Fig. 1), the quadrupole interaction cannot be treated as a perturbation of the hyperfine interaction. It means that we have to perform a complete diagonalization of the spin Hamiltonian of Eq. (2) to retrieve the **A** and **Q** matrix elements.

Due to the narrow linewidth of transitions (the linewidth of the central EPR line is 1.4 G for site 1 and 7.2 G for site 2 when **B** is parallel to ***b***, 2.6 G for site 1 and 0.6 G for site 2 when **B** is parallel to $\boldsymbol{D}_1$, 1.5 G for site 1 and 10 G for site 2 when **B** is parallel to $\boldsymbol{D}_2$), the splitting of the forbidden transitions into two lines is observed (Fig. 1). To our knowledge, it is the first time in the literature that such a splitting has been reported for rare earth elements. These splittings are due only to the quadrupole interaction **Q** and allow us to retrieve the five independent quadrupole matrix elements.

EPR measurements were performed with an *X*-band Bruker Elexsys E 500 spectrometer equipped with an Oxford Instruments variable temperature device. The crystal was mounted on a small Perspex sample holder to allow its orientation with respect to the magnetic field. Angular variations were obtained by rotating the crystal by steps of 10°. For each orientation, the positions of the allowed and forbidden transitions are determined manually from the recorded spectra. By a complete diagonalization, performed on a 16 $\times$16 matrix $[2(2I+1)\times 2(2I+1)]$, the calculated positions are compared to the experimental ones and the spin-Hamiltonian parameters are determined by minimizing the following rms_{norm} parameter taken as the figure of merit for the simulation:

$$\mathrm{rms}_{norm} = \left[\frac{1}{N-11}\sum_{i=1}^{N}\left(\frac{B_i^{expt}-B_i^{calc}}{\mathcal{E}_i}\right)^2\right]^{1/2} = \left(\frac{1}{N-11}\chi^2\right)^{1/2} \tag{3}$$

where B_i^{expt} and B_i^{calc} are the experimental and calculated magnetic field positions. χ^2 is the χ^2 statistic. To get a quantitative measure of the goodness of fit, errors (ϵ_i) have to be taken into account. For each experimental position, the errors are determined by assuming an ±1° accuracy for crystal orientations. The subscript "norm" emphasizes the use of normalized experimental data (i.e., by taking their errors explicitly into account). Fitting normalized data is necessary to ensure that positions measured with the same accuracy have the same weight in the fit. The sum runs from 1 to *N* where *N* is the number of experimental data points. To optimize the 11 parameters corresponding to the hyperfine and quadrupole interactions, 1109 and 1059 experimental positions are used for sites 1 and 2, respectively.

The fitting procedure is performed in two steps. To first obtain a set of starting spin-Hamiltonian parameters, the allowed hyperfine transitions are fitted by only taking into account the hyperfine interaction **A**. The quadrupole splitting is then fitted by fixing these previous **A** values and varying the quadrupole **Q** interaction. This procedure is equivalent to analyzing the EPR spectra by a perturbative approach. Then, with this starting set of parameters, the complete fitting procedure is performed. The positions of the allowed transitions and of the quadrupole splittings are simulated by taking into account both **A** and **Q** interactions. In the spin Hamiltonian of Eq. (2), we consider the nuclear Zeeman interaction. It does not influence the position of the allowed and forbidden transitions but it influences their intensities. It is of particular importance if one wants to reproduce the experimental EPR spectra. A home-made program based on MATLAB software is used for the simulation.

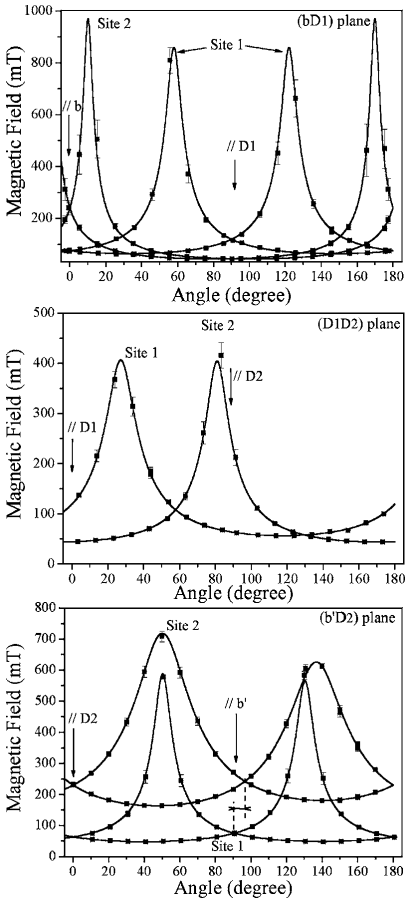

FIG. 2. Angular variation of the position (in mT) of the central line of the EPR spectra of Er^{3+} in Y_2SiO_5. The magnetic field **B** varies in three orthogonal crystallographic planes: $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_1)$, $(\boldsymbol{D}_1,\boldsymbol{D}_2)$ and $(\boldsymbol{b}',\boldsymbol{D}_2)$. See text for definition of $\boldsymbol{b}'$. The two crystallographic sites as well as the inequivalent magnetic sites are shown. Calculated curves using Eq. (1) are represented by solid lines.

III. RESULTS AND DISCUSSION

A. Electronic Zeeman interaction study

The determination of the electronic Zeeman interaction is performed by following the angular variations of the magnetic field position of the central EPR line of sites 1 and 2 and by diagonalization of the Hamiltonian of Eq. (1). Figure 2 gathers the angular variations in the three orthogonal planes as well as the calculated curves. When the magnetic field **B** has an arbitrary orientation, each site splits into two magnetic inequivalent sites. Indeed, in Y_2SiO_5, for each crystallographic site, there are four sites with different orientation in the primitive cell related to each other by a C_2 axis parallel to the $\boldsymbol{b}$ axis and an inversion operation. The sites related by the inversion operation give the same EPR signal whereas the sites related by the C_2 axis give two EPR signals for a general orientation of the magnetic field. In the $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_1)$ plane, when the magnetic field is parallel to the $\boldsymbol{b}$ or to the $\boldsymbol{D}_1$ axis, only two different EPR signals are observed, corresponding to the two different crystallographic sites; the magnetic inequivalency disappears. When the magnetic field deviates from these axes, each EPR signal splits into two magnetically inequivalent signals related by the C_2 axis. These two inequivalent sites have the same angular variations with the same extrema (Fig. 2). We take into account in the simulation this property of symmetry by applying to the Hamiltonian of Eq. (1) the C_2 symmetry operation. As the C_2 axis is perpendicular to the $(\boldsymbol{D}_1\boldsymbol{D}_2)$ plane, each site gives only one EPR signal in this plane (Fig. 2). In the $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_2)$ plane (Fig. 2), when **B** is parallel to the $\boldsymbol{D}_2$ axis, each site gives only one signal. However at 90° from $\boldsymbol{D}_2$, the signals are not superimposed. Contrary to what it is observed in the $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_1)$ plane, the angular variations of each inequivalent site are slightly different with different extrema. This effect, which is clearly seen for site 2 (Fig. 2), indicates that we are not exactly in the $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_2)$ plane but rather in a $(\boldsymbol{b}',\boldsymbol{D}_2)$ plane. We have simulated independently site 1 and site 2 and we have found for each site the same angle of misalignment: the $\boldsymbol{b}'$ axis is at 1.1° from the $\boldsymbol{b}$ axis in the $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_1)$ plane. This angle can be attributed to an error in the facet orientation of the crystal or to a slight misalignment of the crystal with respect to the magnetic field direction. This angle is taken into account in the following simulations.

From the simulations of the angular variations of the EPR central line, we have built the following matrices for the electronic Zeeman interaction:

$$g_1 = \begin{pmatrix} 2.92 & -3.08 & -3.68 \\ -3.08 & 8.19 & 5.96 \\ -3.68 & 5.96 & 5.52 \end{pmatrix}_{(D_1,D_2,b)} \tag{4}$$

for site 1 and

TABLE I. Principal values and Euler angles of the g factor of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 for sites 1 and 2.

Principal values	Euler angles (deg) α	β	γ
	Site 1		
$\lvert g_x\rvert=0.00(5)$			
$\lvert g_y\rvert=1.79(3)$	207(1)	53(1)	247(1)
$\lvert g_z\rvert=14.83(1)$			
	Site 2		
$\lvert g_x\rvert=0.55(5)$			
$\lvert g_y\rvert=1.70(3)$	261(1)	100(1)	103(1)
$\lvert g_z\rvert=15.54(1)$			

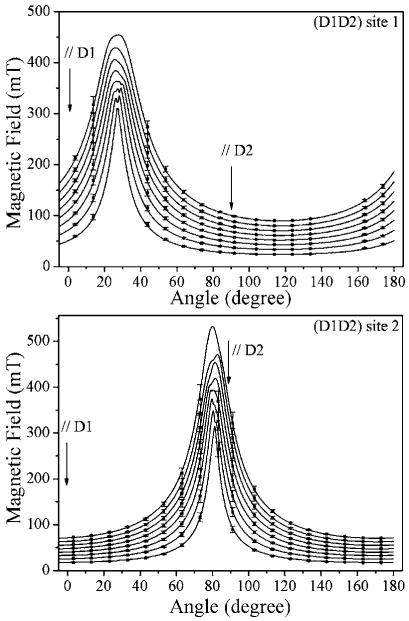

FIG. 3. Angular variation of the positions (in mT) of the eight allowed hyperfine transitions for Er^{3+} in Y_2SiO_5. The magnetic field **B** varies in the $(\boldsymbol{D}_1,\boldsymbol{D}_2)$ plane. The two crystallographic sites are shown. Calculated curves are represented by solid lines.

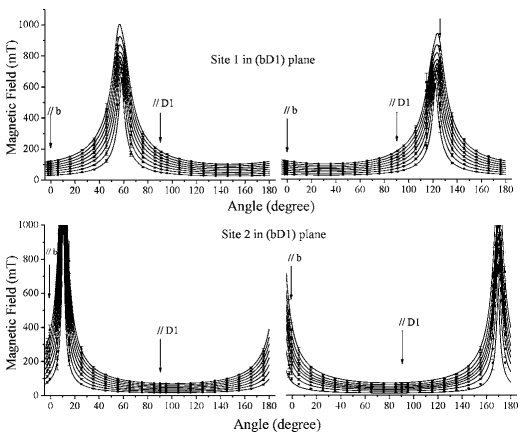

FIG. 4. Angular variation of the positions (in mT) of the eight allowed hyperfine transitions for Er^{3+} in Y_2SiO_5. The magnetic field **B** varies in the $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_1)$ plane. The two crystallographic sites are shown. Calculated curves are represented by solid lines.

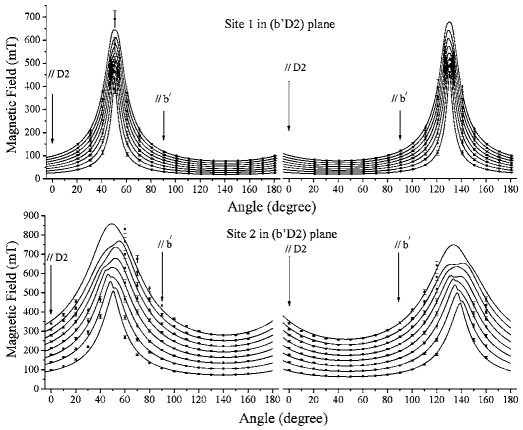

FIG. 5. Angular variation of the positions (in mT) of the eight allowed hyperfine transitions for Er^{3+} in Y_2SiO_5. The magnetic field **B** varies in the $(\boldsymbol{b}',\boldsymbol{D}_2)$ plane. See text for definition of $\boldsymbol{b}'$. The two crystallographic sites are shown. Calculated curves are represented by solid lines.

$$g_2 = \begin{pmatrix} 14.75 & -2.02 & 2.62 \\ -2.02 & 1.89 & -0.93 \\ 2.62 & -0.93 & 0.05 \end{pmatrix}_{(D_1,D_2,b)} \tag{5}$$

for site 2. After diagonalization, the principal **g** values and the Euler angles α, β, and γ of the principal axes with respect to the crystallographic axes $(\boldsymbol{D}_1,\boldsymbol{D}_2,\boldsymbol{b})$ are calculated. The results are given in Table I. Since the trace of a tensor is invariant with respect to rotations, the relative signs of the principal **g** values are deduced from the diagonalization of matrices of Eqs. (4) and (5). For site 1, the principal g values have the same sign and for site 2, the g_x value and the g_y, g_z values have opposite signs.

Our values agree with the **g** values given in Ref. 22 where only the maximum and the minimum **g** values were determined because the authors could not investigate the complete angular dependence of the resonances with respect to the magnetic field. They found a maximum value of 14.80 ± 0.01 and 15.46 ± 0.01 for sites 1 and 2, respectively; and a minimum **g** value smaller than 0.8 for both sites. Some small discrepancies are found with Ref. 14 probably due to small misalignment of the crystal in their experiments. As we can see from Table I, the principal axes are not oriented along the optical axes. The errors are given in parenthesis. For example, the Euler angles are given in degrees with a $\pm1°$ error.

B. Hyperfine and quadrupole interactions study

The angular variations of the eight allowed hyperfine transitions are shown in Figs. 3–5 with the calculated curves using the Hamiltonian of Eq. (2). For the sake of clarity, in the $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_1)$ and $(\boldsymbol{b}',\boldsymbol{D}_2)$ planes, the angular variations of the magnetically inequivalent sites are shown on different figures. For some magnetic field orientations and in particular

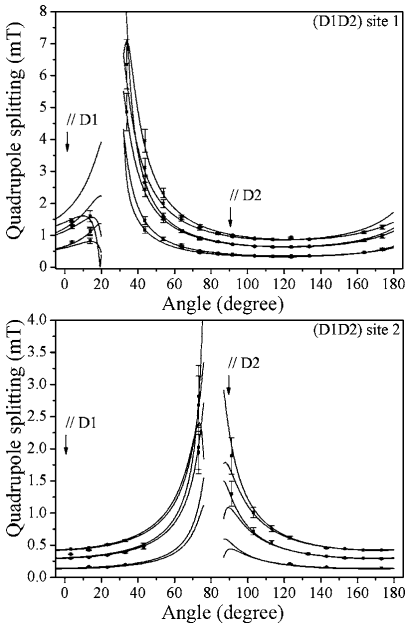

FIG. 6. Angular variation of the six quadrupole splittings (in mT) of forbidden hyperfine transitions for Er^{3+} in Y_2SiO_5. The magnetic field **B** varies in the $(\boldsymbol{D}_1,\boldsymbol{D}_2)$ plane. The two crystallographic sites are shown. Calculated curves are represented by solid lines.

when the EPR signal is going toward high magnetic field, we could not obtain accurate experimental data. For these orientations, it was not possible to distinguish between the allowed and forbidden transitions. Their intensities become equivalent and the allowed transitions were not longer equally spaced, contrary to the spectra shown in Fig. 1. These behaviors are the combination of two effects: (i) for some orientations, the quadrupole interaction is of the same order of magnitude of the hyperfine interaction and (ii) the hyperfine and quadrupole principal axes are not coincident.[15] Indeed, if we try to simulate the positions of the allowed transitions by considering the quadrupole interaction as a perturbation of the hyperfine interaction, we find a good agreement between the experimental points and the calculated ones when the EPR signals are in the low-field part of the spectra. However, when the signals are going towards the high-magnetic-field part of the EPR spectral range, the agreement is poor with at least 10% discrepancy between the experimental and the calculated curves. Figures 6–8 gather the six quadrupole splittings of the forbidden transitions as function of the magnetic field orientation with the corresponding calculated curves. For sake of clarity, some part of the calculated curves are not shown. By fitting simultaneously the positions of the allowed transitions and the quadrupole splittings we have built the following matrices for the **A** and **Q** interactions:

$$\mathbf{A}_1 = \begin{pmatrix} 69.35 & -580.73 & -248.83 \\ -580.73 & 696.30 & 682.49 \\ -248.83 & 682.49 & 495.54 \end{pmatrix}_{(D_1,D_2,b)}, \quad (6)$$

$$\mathbf{Q}_1 = \begin{pmatrix} 21.40 & -8.18 & -15.27 \\ -8.18 & 3.79 & 0.60 \\ -15.27 & 0.60 & -25.20 \end{pmatrix}_{(D_1,D_2,b)}, \quad (7)$$

for site 1 and for site 2

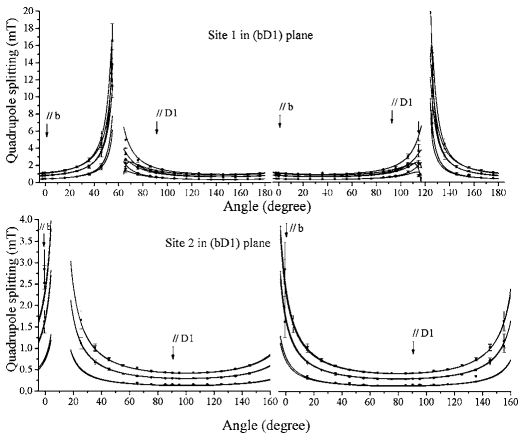

FIG. 7. Angular variation of the six quadrupole splittings (in mT) of forbidden hyperfine transitions for Er^{3+} in Y_2SiO_5. The magnetic field **B** varies in the $(\boldsymbol{b},\boldsymbol{D}_1)$ plane. The two crystallographic sites are shown. Calculated curves are represented by solid lines.

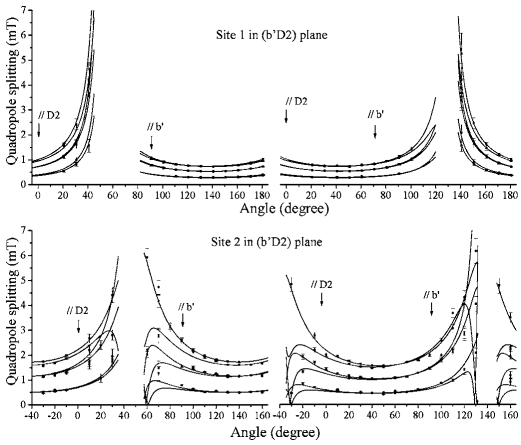

FIG. 8. Angular variation of the six quadrupole splittings (in mT) of forbidden hyperfine transitions for Er^{3+} in Y_2SiO_5. The magnetic field **B** varies in the $(\boldsymbol{b}',\mathbf{D}_2)$ plane. See text for definition of $\boldsymbol{b}'$. The two crystallographic sites are shown. Calculated curves are represented by solid lines.

TABLE II. Principal values and Euler angles of the hyperfine and quadrupole interactions of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 for sites 1 and 2.

A interaction				*Q* interaction			
Principal values (MHz)	Euler angles (deg) α	β	γ	Principal values (MHz)	Euler angles (deg) α	β	γ
			Site 1				
$\lvert A_x\rvert=43.6(3)$				$\lvert Q_x\rvert=28.55(3)$			
$\lvert A_y\rvert=319.1(3)$	208(1)	55(1)	249(1)	$\lvert Q_y\rvert=1.29(3)$	100(1)	17(1)	117(1)
$\lvert A_z\rvert=1536.7(2)$				$\lvert Q_z\rvert=29.85(3)$			
			Site 2				
$\lvert A_x\rvert=6.3(3)$				$\lvert Q_x\rvert=56.9(1)$			
$\lvert A_y\rvert=398(3)$	264(1)	95(1)	137(1)	$\lvert Q_y\rvert=2.7(1)$	287(1)	27(1)	358(1)
$\lvert A_z\rvert=1555(2)$				$\lvert Q_z\rvert=59.6(1)$			

$$\mathbf{A}_2=\begin{pmatrix}-1521.40 & 178.11 & -141.76\\ 178.11 & 172.09 & 212.54\\ -141.76 & 212.54 & 199.01\end{pmatrix}_{(D_1,D_2,b)}, \quad (8)$$

$$\mathbf{Q}_2=\begin{pmatrix}-3.50 & -19.84 & 24.22\\ -19.84 & 50.40 & 6.73\\ 24.22 & 6.73 & -46.90\end{pmatrix}_{(D_1,D_2,b)}. \quad (9)$$

A and **Q** are given in megahertz. On 1109 and 1059 experimental positions, we found a rms_{norm} value of 0.9288 and 2.0319 for sites 1 and 2, respectively. The rms_{norm} value is higher for site 2 than for site 1 because in site 2 we probably underestimate the errors. Indeed, in each plane, the position of the EPR signal attributed to site 2 is always more sensitive to a misalignment of the crystal with respect to the magnetic field direction as we have already seen in Fig. 2 for the $(\boldsymbol{b}',\boldsymbol{D}_2)$ plane. However these errors are difficult to estimate, we have thus decided to keep this rms_{norm} value for site 2. As a conclusion, the higher value of rms_{norm} for site 2 reveals a higher sensitivity of the EPR signal positions to the magnetic field orientation.

After diagonalization of matrices of Eqs. (6)–(9), the principal **A** and **Q** values and the Euler angles α, β, and γ of the principal axes with respect to the crystallographic axes $(\boldsymbol{D}_1,\boldsymbol{D}_2,\boldsymbol{b})$ are calculated. The results are given in Table II and the orientation of the principal axes of the different interactions are shown in Fig. 9. The errors are obtained from the estimated covariance matrix of the standard errors in the 11 fitted parameters by taking the square root of the diagonal elements of this matrix. The covariance matrix is obtained from the Hessian matrix as described in Ref. 23.

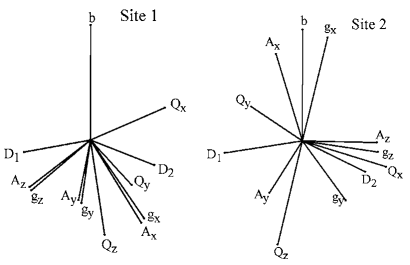

FIG. 9. Orientations of the principal axes of the **g**, **A**, and **Q** interactions with respect to the (D_1,D_2,b) axis set for sites 1 and 2 of Er^{3+} in Y_2SiO_5.

From the Euler angles, we determine by a scalar product, the angles between the principal axes of the different interactions. For site 1 and from Tables I and II, we find that the **g** and **A** interactions are quasicoincident with the g_x, g_y, and g_z principal axes oriented at 3.2°, 2.4°, and 2.3° with respect to the A_x, A_y, and A_z principal axes (Fig. 9). The quadrupole interaction **Q** is not coincident with the hyperfine interaction **A**. The A_x, A_y, and A_z principal axes are oriented at 66.1°, 33.9°, and 62° with respect to the Q_x, Q_y, and Q_z principal axes.

For site 2, the g_z principal axis is nearly coincident with the A_z component with an angle of 5.3° (Fig. 9). The g_x and g_y principal axes are oriented at 60.7°, and 119.6° with respect to the A_x and A_y principal axes. The A_x, A_y, and A_z principal axes are oriented at 129.9°, 122.3°, and 109.2° with respect to the Q_x, Q_y, and Q_z principal axes.

For site 1, the A_y value and the A_x, A_z values have opposite signs; the Q_z value and the Q_x, Q_y values have opposite signs. For site 2, the A_z value and the A_x, A_y values have opposite signs; the Q_z value and the Q_x, Q_y values have opposite signs.

To validate our set of spin-Hamiltonian parameters, two tests have been performed. First, we check if the minimum found by our program, which minimized the difference between the experimental and calculated magnetic field positions, was true. We have repeated the simulation several times by generating random sets of initial parameters. The program always converges to the same final set of spin-Hamiltonian parameters. A second test has been performed by testing the wave functions obtained from the diagonalization of the Hamiltonian of Eq. (2). For this, we have calculated the EPR spectrum of Er^{3+} ions for a very general orientation of the magnetic field and we have compared this

spectrum to the corresponding experimental one. For example, Fig. 1 gathers the calculated and the experimental spectra for **B** parallel to the ***b*** axis. The positions of the lines as well as their intensities are well reproduced. For each site, the relative intensities within the allowed and forbidden hyperfine patterns agree rather well with the experimental spectrum. Some differences are nevertheless observed. In particular, the forbidden transitions characterized by $\Delta M_I = \pm 2$, which appear on both sides of the allowed hyperfine transitions, are sometimes more intense in the computed spectra than in the experimental spectra. This discrepancy can have two origins. First, the linewidth of the hyperfine transitions are not the same along the whole hyperfine pattern. We try to consider this effect in the simulation. For example, for site 2, the linewidth of the lowest allowed hyperfine transition is half of the linewidth of the highest allowed hyperfine transition. Second, as the different transitions are very narrow, some scan speed or over modulation effects can still be present in our experimental spectra.

IV. CONCLUSION

We have characterized by EPR spectroscopy the hyperfine structure of the ground state of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 for both crystallographic sites. The low symmetry of these sites implies that the electronic Zeeman **g**, the hyperfine **A**, and the quadrupole **Q** interactions are not coincident. Contrary to what it is usually done in the literature, the spin Hamiltonian of the system cannot be treated by perturbation theory as the quadrupole interaction is for some orientations of the magnetic field of the same order of magnitude as the hyperfine interaction. A good agreement is obtained between experimental and simulated magnetic field positions and relative intensities of EPR lines. The agreement is better for site 1 than for site 2 with rms_{norm}'s of 0.9288 and 2.0319, respectively.

We can expect in this material a strong nuclear spin projections mixing which will imply an efficient three-level Λ system within the hyperfine levels as the transitions between the two legs of the Λ will be allowed. Having determined the ground state hyperfine splitting by EPR, hole burning spectroscopy will be performed to retrieve the hyperfine splitting of the excited state. EPR spectroscopy in the $^4I_{13/2}$ excited state under optical excitation in site 1 or site 2 can also be performed to obtain by an equivalent study the spin-Hamiltonian parameters of the excited state.

*Author to whom correspondence should be addressed. Electronic address: olivier-guillotn@enscp.fr

[1] R. M. Macfarlane and R. M. Shelby in *Spectroscopy of Solids Containing Rare Earth Ions*, edited by A. A. Kaplyanskii and R. M. Macfarlane (North-Holland, Amsterdam, 1987), p. 51.
[2] E. Fraval, M. J. Sellars, and J. J. Longdell, Phys. Rev. Lett. **92**, 077601 (2004).
[3] E. Fraval, M. J. Sellars, and J. J. Longdell, Phys. Rev. Lett. **95**, 030506 (2005).
[4] B. Julsgaard, J. Sherson, J. I. Cirac, J. Fiurasek, and E. S. Polzik, Nature (London) **432**, 482 (2004); T. Chanelière, D. N. Matsukevich, S. D. Jenkins, S. Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich, *ibid.* **438**, 833 (2005); M. D. Eisaman, A. André, F. Massou, M. Fleischhauer, A. S. Zibrov, and M. D. Lukin, *ibid.* **438**, 837 (2005).
[5] H. J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac, and P. Zoller, Phys. Rev. Lett. **81**, 5932 (1998).
[6] M. D. Lukin, Rev. Mod. Phys. **75**, 457 (2003).
[7] D. F. Phillips, A. Fleischhauer, A. Mair, R. L. Walsworth, and M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **86**, 783 (2001).
[8] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, and P. R. Hemmer, Phys. Rev. Lett. **88**, 023602 (2002).
[9] J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars, and N. B. Manson, Phys. Rev. Lett. **95**, 063601 (2005).
[10] Ph. Goldner and O. Guillot-Noël, Mol. Phys. **102**, 1185 (2004).
[11] O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, E. Antic-Fidancev, and J. L. Le Gouët, Phys. Rev. B **71**, 174409 (2005).
[12] F. de Seze, A. Louchet, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J. L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and Ph. Goldner, Phys. Rev. B **73**, 085112 (2006).
[13] R. M. Macfarlane, J. Lumin. **100**, 1 (2002).
[14] T. Böttger, Ph.D. thesis, Montana State University, 2002.
[15] J. R. Pilbrow and M. R. Lowrey, Rep. Prog. Phys. **43**, 433 (1980).
[16] G. R. Asatryan and J. Rosa, Phys. Solid State **44**, 864 (2002); S. K. Misra and S. Isber, Physica B **253**, 111 (1998); S. K. Misr, S. Isber, J. A. Cappobianco, and E. Cavalli, Chem. Phys. **240**, 313 (1999); J. L. Boldu, M. M. Abraham, and L. A. Boatner, J. Chem. Phys. **86**, 5267 (1987); J. P. R. Wells, M. Yamaga, R. W. Mosses, T. P. J. Han, H. G. Gallagher, and T. Yosida, Phys. Rev. B **61**, 3905 (2000); M. T. Borowiec, A. A. Prochorov, A. D. Prochorov, V. P. Dyakonov, and H. Szymczak, J. Phys.: Condens. Matter **15**, 5113 (2003).
[17] M. H. L. Pryce, Proc. Phys. Soc., London, Sect. A **63**, 25 (1950).
[18] A. Abragam and M. H. L. Pryce, Proc. R. Soc. London, Ser. A **205**, 135 (1951).
[19] T. Böttger, C. W. Thiel, Y. Sun, and R. L. Cone, Phys. Rev. B **73**, 075101 (2006).
[20] F. K. Kneubühl, Phys. Kondens. Mater. **1**, 410 (1963).
[21] V. G. Grachev, Sov. Phys. JETP **92**, 1834 (1987).
[22] I. N. Kurkin and K. P. Chernov, Physica B & C **101**, 233 (1980).
[23] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling, *Numerical Recipes in Pascal* (Cambridge University Press, New York, 1989), Chap. 14.

Identification Λ-like systems in Er^{3+} :Y_2SiO_5 and observation of electromagnetically induced transparency

E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, S. Briaudeau, J.A. Levenson, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.L. Le Gouët, O. Guilloet-Noël, and Ph. Goldner

Physical Review B **81**, 144303 (2010)

PHYSICAL REVIEW B **81**, 144303 (2010)

Identification of Λ-like systems in $Er^{3+}:Y_2SiO_5$ and observation of electromagnetically induced transparency

E. Baldit, K. Bencheikh,* P. Monnier, S. Briaudeau,† and J. A. Levenson
Laboratoire de Photonique et de Nanstructures, CNRS-UPR 20, 91460 Marcoussis, France

V. Crozatier, I. Lorgeré,‡ F. Bretenaker, and J. L. Le Gouët
Laboratoire Aimé Cotton, CNRS-UPR 3321, University Paris-Sud, Bât. 505, 91405 Orsay Cedex, France

O. Guillot-Noël‡ and Ph. Goldner
Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris, CNRS-UMR 7574, ENSCP, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05, France
(Received 5 February 2010; published 30 April 2010)

Electromagnetically induced transparency (EIT) is reported in a solid-state material doped with erbium ions. In this paper we introduce the spectroscopic investigations we have conducted in order to identify the adequate Λ-like three-level systems in $Er^{3+}:Y_2SiO_5$ crystal, relevant for the demonstration of EIT. These results pave the way for nonlinear and quantum optics applications based on EIT at the telecom wavelength around 1.5 μm.

DOI: 10.1103/PhysRevB.81.144303 PACS number(s): 78.47.nd, 32.80.Qk, 42.50.Gy

I. INTRODUCTION

Electromagnetically induced transparency (EIT) is a well-known quantum interference phenomenon allowing the annihilation of the absorption of an otherwise absorbing medium when excited with a resonant electromagnetic field.[1] Beyond this linear effect, EIT has been during the last years a master phenomenon for a wide variety of applications in nonlinear and quantum optics. EIT has indeed been reported in atomic vapors, cold atoms, and also in solids and allowed the enhancement of nonlinear optical processes, slow light propagation, and storage of optical pulses (for a review, see, for example, Ref. 1). More recently storage of squeezed states of light has been demonstrated by two groups,[2,3] showing the exciting potential of EIT for quantum states manipulation and quantum information.

The standard configuration for EIT is a three-level Λ-like system excited by two electromagnetic fields labeled coupling and probe, sharing a common excited state and starting from distinct ground levels. Generally, the efficiency of EIT is dictated by the lifetime and the coherence of the ground levels. In the quest of such system with outstanding performance, rare-earth ion-doped crystals are expected to play an important role. In such solid-state materials, the triply ionized rare-earth ions are characterized by fine optical transitions among $4f^n$ electrons shielded from the crystalline environment by the outer $5s$ and $5p$ electrons. This confers to the ions a long-lived exited electronic state where T_1 can range from microsecond to millisecond. T_1 can even be longer for the hyperfine levels, depending on the process involved in the population redistribution among the hyperfine sublevels of the ground electronic state.[4] In addition, the optical and hyperfine coherences T_2 can be extended through a careful choice of the host material in order to minimize the perturbation induced by the host atoms on the rare-earth ions and through the concentration of the rare-earth ions in the crystal in order to reduce the mutual interaction between the closest rare-earth ions. Fraval *et al.*[5] succeeded to extend the coherence time of the hyperfine transitions in a praseodymium-doped Y_2SiO_5 crystal to about 30 s by applying an appropriate magnetic field and a rf pulse sequence, reducing the spin fluctuations and storing light more than 1 s using EIT in the same material.[6] More recently, by embedding the praseodymium in a different host material, the $La_2(WO_4)_3$ crystal, Goldner *et al.*[7] have measured a coherence time of 250 μs and observed efficient EIT. Erbium-doped systems are popular for applications in several domains mainly due to the fact that the optical transition occurs around 1.5 μm coinciding with the transparency band of telecom optical fibers. Erbium-doped crystals were used in many coherent nonlinear interactions including ultraslow light propagation via coherent population oscillations.[8] Oddly enough, EIT was not yet reported in erbium-doped materials. This demonstration is the main achievement reported in this paper.

In our investigations, we have adopted the Y_2SiO_5 crystal as the host material. This crystal lattice has been chosen because it engenders very low perturbation on the rare-earth ions when working at low temperatures. Indeed, long coherence times are expected because the constituent elements in Y_2SiO_5 have small magnetic moments ($-0.137\mu_N$ for ^{89}Y) or small natural abundance of magnetic isotopes (4.7% with $-0.554\mu_N$ for ^{29}Si and 0.04% with $-1.89\mu_N$ for ^{17}O). By a careful choice of the erbium ions concentration and by applying an appropriate external magnetic field to the crystal, Böttger[9] achieved a dephasing time of 4.38 ms in Y_2SiO_5 crystal doped with natural erbium ions, showing the possibility of manipulating and increasing the coherence. All this, along with the work in Ref. 5, suggest that the manipulation of the hyperfine coherence in erbium-doped Y_2SiO_5 crystal can be achieved, putting this solid-state material as a promising candidate for EIT and the subsequent applications in the telecom wavelength range.

In our approach, we have besides particularly chosen the isotope 167 for its nuclear spin $I=7/2$ which is at the origin

 ©2010 The American Physical Society

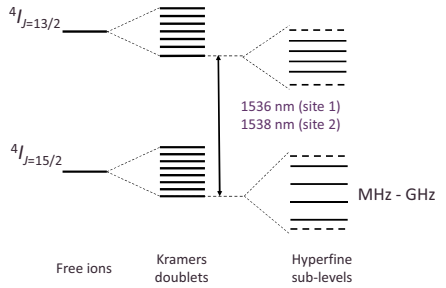

FIG. 1. (Color online) Energy levels of erbium ions.

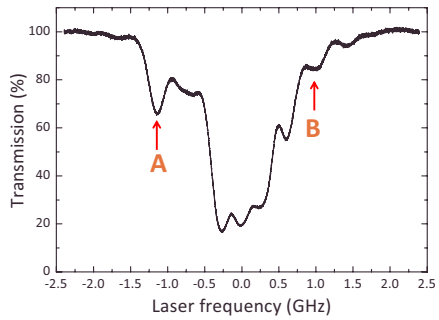

FIG. 2. (Color online) Linear transmission of a weak electromagnetic field across a 3-mm-long $^{167}Er^{3+}:Y_2SiO_5$ crystal. The wavelength is tuned around 1536 nm in order to excite the erbium ions in site 1. The crystal is maintained at low temperature (1.5 K).

of a rich hyperfine structure among which at least two Λ-like systems with optical transitions at 1.5 μm have been identified and in which EIT has been observed. This paper describes first the spectroscopic investigations we have conducted in order to characterize the unknown hyperfine structure of the $^{167}Er^{3+}$ ions in the particular crystal Y_2SiO_5 and to identify Λ-like three-level systems suitable for EIT. In Sec. II, we describe the spectral hole burning (SHB) spectroscopy, a technique used along with electron-paramagnetic-resonance (EPR) spectroscopy for the identification of the energy-level structure of the erbium ions. Among these levels, two Λ-like systems have been identified. Section III is dedicated to what we believe is the first experimental demonstration of EIT in the erbium-doped crystal.

II. IDENTIFICATION OF Λ-LIKE SYSTEMS

A. $Er^{3+}:Y_2SO_5$ crystal

The crystal used in our experiments is an yttrium oxyorthosilicate (Y_2SiO_5) lattice doped with 0.005 at. % of $^{167}Er^{3+}$ ions supplied by Scientific Materials Inc. (Bozeman, Montana). It is cut along the three orthogonal optical extinction axes **b** (3 mm), $\mathbf{D}_1$ (5 mm), and $\mathbf{D}_2$ (6 mm). The Y_2SiO_5 has a monoclinic structure with $C2/c$ space group. The Er^{3+} ions substitute to yttrium ions in two nonequivalent low-symmetry C_1 sites surrounded, respectively, by seven and six neighbors. The energy diagram of the erbium ions is depicted in Fig. 1. The free erbium ions have a $4f^{11}$ configuration with $^4I_{15/2}$ being the ground state and $^4I_{13/2}$ being the first excited state, where 15/2 and 13/2 are the total momenta $J=L+S$. Under the influence of the electric field produced by the crystalline environment, the degeneracy of the $J=15/2$ level is partially lifted and the level splits into eight Kramers doublets. Equivalently, the excited state $J=13/2$ splits into seven Kramers doublets. At liquid-helium temperature, only the lowest Kramers doublet of the ground state $^4I_{15/2}$ is populated and it can be described by an effective electronic spin $S_{eff}=1/2$. The transition wavelength from the lowest Kramers doublet of the ground state $^4I_{15/2}$ to the lowest Kramers doublet of the excited state $^4I_{13/2}$ is 1536 nm for erbium ions in site 1 and 1538 nm for those in site 2.

Among the erbium isotopes, we choose $^{167}Er^{3+}$ ions, the only isotope having a nuclear spin that is $I=7/2$. Due to the hyperfine interaction $H_{hyp}=\mathbf{S}\cdot\mathbf{A}\cdot\mathbf{I}$ and the quadrupole interaction $H_q=\mathbf{I}\cdot\mathbf{Q}\cdot\mathbf{I}$, where **A** and **Q** are, respectively, the hyperfine matrix and the electric quadrupole matrix, the Kramers doublets split into maximum $(2S_{eff}+1)(2I+1)=16$ hyperfine sublevels even in the absence of any external magnetic field because of the low symmetry of the crystal. The matrix **A** and **Q** of the ground state $^4I_{15/2}$ have been fully determined using the EPR spectroscopy.[10] The huge number of hyperfine sublevels in the excited and ground states offers in principle multiple possibilities of Λ-like schemes for EIT. Indeed, all the transitions are allowed because the selection rule is not fulfilled as the hyperfine levels are not pure quantum states but mixtures of $|I=7/2,M_I\rangle$, where $M_I=\pm 7/2,\pm 5/2,\pm 3/2,\pm 1/2$ is the projection of the nuclear spin.

Identifying these Λ-like systems is a challenging task essentially because the hyperfine structure is hidden by the inhomogeneous broadening associated with the inhomogeneity of the crystal field. Figure 2 shows the linear transmission at 1.5 K of a weak electromagnetic field tuned over few gigahertz in order to cover all the inhomogeneously broadened transition of erbium ions in site 1 (λ=1536 nm). The electromagnetic field propagates along axis **b** of the crystal and is linearly polarized along $\mathbf{D}_2$ axis. The $^{167}Er^{3+}:Y_2SiO_5$ transmission shows peaks that are convolution of the inhomogeneous broadening with some of the hyperfine transitions. The number of hyperfine transitions is expected to be higher than the few peaks appearing in the spectrum depicted in Fig. 2. This disagreement between the theoretical expectations and the experimentally observed peaks is due to the rather large inhomogeneous linewidth (few hundreds of megahertz) masking the smallest hyperfine splittings.

B. Spectral hole burning spectroscopy

In order to determine the unresolved hyperfine splittings hidden by the inhomogeneous broadening, SHB spectroscopy is used.[4,11] In this technique, a pump field whose frequency is fixed within the inhomogeneous absorption line excites those particular ions whose energy difference between any hyperfine ground state and any hyperfine excited

state coincides with the pump frequency. In the $^{167}Er^{3+}:Y_2SiO_5$, there are 256 (16×16) possible ion classes that can fulfill the resonance condition. In the stationary regime, each class of ions sees the population of its hyperfine ground state concerned by the pumping process, depleted and transferred to the other remaining 15 hyperfine levels.

A weak electromagnetic field called probe can read this population redistribution by measuring its absorption as its frequency is tuned over the whole inhomogeneous line. Indeed to the depleted hyperfine ground state are associated holes (less absorption) in the absorption profile, whereas antiholes (more absorption) are associated with transitions involving the overpopulated hyperfine ground states. The linewidths of these holes and antiholes are on the order of the homogeneous broadening. It is by measuring the frequency separations of these holes and antiholes from the pump frequency that the hyperfine splittings of the ground and excited states can be inferred. A simple analysis shows that the splittings among the excited hyperfine sublevels are inferred from the holes whereas the antiholes are linear combinations of the splittings of both the ground and excited hyperfine sublevels. This situation is true when the inhomogeneous broadening is much larger than any hyperfine splitting and thus when all the ions classes are excited. In this case the number of holes and antiholes is independent on where the pump is positioned in the inhomogeneous line. However this is not the case for $^{167}Er^{3+}:Y_2SiO_5$ where the different splittings can be smaller or larger than the inhomogeneous broadening. This situation is very complicated since only a fraction of ion classes, dependent on the pump wavelength, is excited and thus the holes and antiholes structures vary depending on where the pump frequency is fixed in the inhomogeneous line.

Despite the complexity of the system, some of the hyperfine sublevels have been identified using SHB spectroscopy and are consistent with the ground-state hyperfine structure fully identified using EPR spectroscopy.[10] Note that for EIT, it is not necessary to know the entire hyperfine structure of the excited state. Indeed, what is relevant is the knowledge of the splitting of two hyperfine sublevels of the ground state that will form a Λ system with any hyperfine sublevel of the excited state.

The experimental setup for the SHB spectroscopy is depicted in Fig. 3. The pump source is a continuous-wave (cw) Er-doped fiber laser (KOHERAS) emitting about 5 mW at 1536 nm and temperature tunable by about 1 nm. The probe source is an Er-doped fiber laser purchased from KOHERAS as well. It is a cw 2 kHz linewidth laser emitting more than 150 mW at 1536 nm. It is possible to slowly tune it by changing the fiber temperature and faster (500 Hz bandwidth) by pulling the laser fiber using a PZT transducer that is externally controlled with a wave-function generator (SRS DS345). The overall tunability is 1 nm. Acousto-optic modulators (AOMs) on the optical paths of pump and probe fields are used to gate the pump and the probe beams, to control their durations, and their relative delay. The AOMs are driven by a digital pulse/delay generator (SRS DG535). The probe field is then detected using an InGaAs detector (New Focus 1181). In order to improve the signal-to-noise ratio (SNR) of the detection, frequency modulation (FM) technique is implemented.[12] For this purpose, the probe field is phase modulated using an electro-optic modulator (EOM) driven at 1.27 MHz. We are able to obtain an FM signal of the transmitted probe having an improved SNR by a factor of 10 with respect to the SNR of the direct transmission signal. Both the direct transmission and the FM signal are acquired with a 500 MS/s sampling rate numerical oscilloscope.

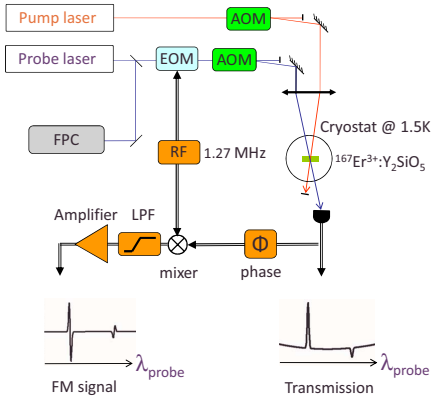

FIG. 3. (Color online) Scheme of the experimental setup for spectral hole burning spectroscopy. FPC: Fabry-Perot cavity used as a frequency reference. The free spectral range is 300 MHz; EOM: electro-optic modulator; AOM: acousto-optic modulator; LPF: low-pass filter; and Φ is an adjustable electronic phase in order to optimize the FM signal.

A square-shaped 20 ms long pump pulse is first applied to the crystal. The central wavelength of the pulse is fixed within the inhomogeneous line of the crystal. Its peak power is about 1.7 mW and its waist is 680 μm. After a delay that can be varied at will, the probe pulse is applied. Its duration is 1 ms and its frequency is linearly tuned over few hundreds of megahertz within the inhomogeneous line. The probe beam is focused down to a waist of 377 μm. Its peak power is weak, about 10 μW, in order to avoid bleaching. The frequency of the probe is swept at a 200 Hz rate using a triangle shaped signal delivered by a wave generator driving the PZT of the laser.

Typical probe transmission and FM signals are depicted in Fig. 4 as the probe frequency is tuned. They show a huge number of holes and antiholes which makes it rather difficult to extract the hyperfine structure of the ground and excited states. Nevertheless, exploiting spectra similar to those in Fig. 4 for a series of pump wavelength exploring the inhomogeneous line and along with the EPR spectroscopy results,[10] we were able to identify about ten interesting configurations corresponding to Λ-like systems. Two of them have been addressed in order to implement EIT. Both are shown in Fig. 5 along with the hyperfine structure of the ground electronic state $^4I_{15/2}$. The first one is obtained when the pump frequency is fixed in the inhomogeneous line at A as indicated by the arrow in Fig. 2. When the probe is tuned to the blue, 880 MHz away from the pump, an antihole appears, revealing a transfer of population from the hyperfine

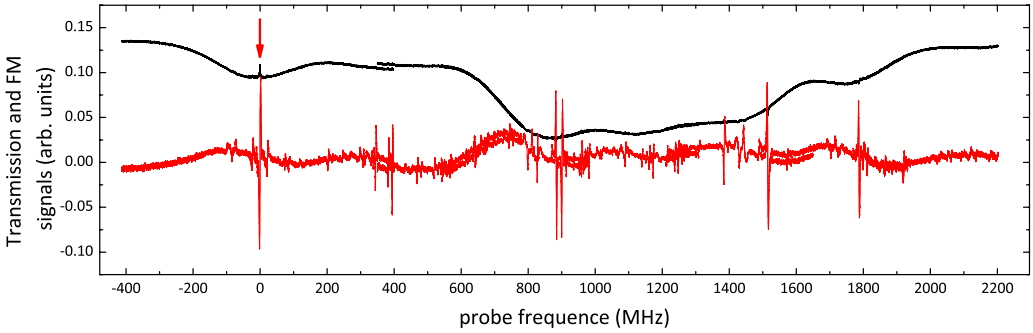

FIG. 4. (Color online) Top (black): transmission of a weak probe tuned around 1536 nm as erbium ions are excited by the pump indicated by the red arrow. Bottom (red): FM signal associated with the probe transmission. The presence of holes and antiholes is revealed in the FM signal by the dispersive shapes having slopes with opposite signs.

sublevel $|4\rangle$ to sublevel $|3\rangle$. The interval between the states is in agreement with the EPR results.[10] When the frequency of the pump is at B (see arrow in Fig. 2), a red detuned antihole peak appears in the transmission profile of the probe at 740 MHz away from the pump frequency, revealing this time a population transfer from hyperfine sublevel $|1\rangle$ to sublevel $|2\rangle$. We notice in both cases that one expect EIT effect to be superposed to the pumping effect, so the EIT transmission peak grows up inside the antihole. We also draw attention on the fact that the two Λ-like systems are not associated with the same ions class since the splitting of states $|1\rangle$ and $|4\rangle$ is about 5.6 GHz, where as the splitting between A and B inferred from Fig. 2 is about 2.5 GHz.

The EIT amplitude and width are governed by both the hyperfine coherence and the population in the hyperfine sublevel excited by the probe field. Ideally, the coherence lifetime should be infinite and all the population in the hyperfine sublevel resonant with the probe, whereas the hyperfine sublevel excited by the pump field should remain empty. In order to approach this configuration, we have investigated the

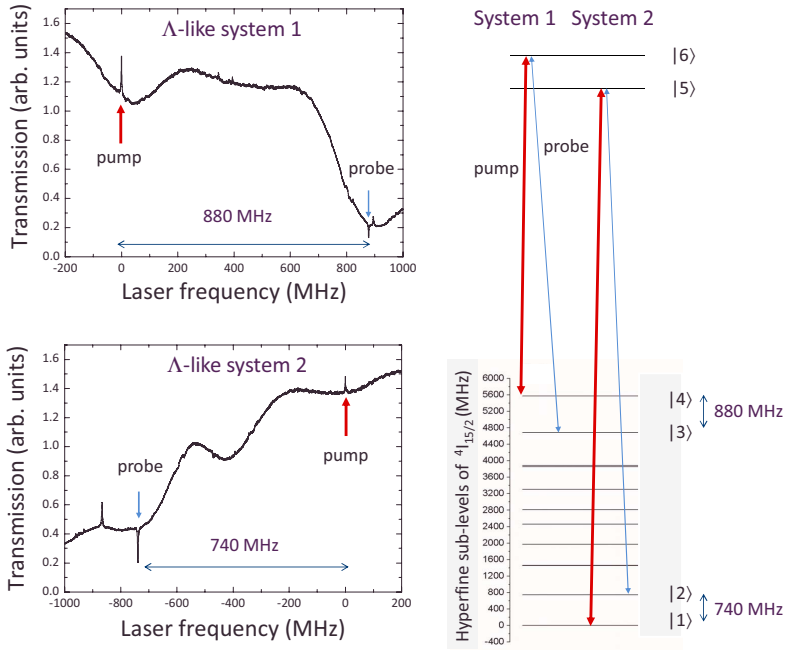

FIG. 5. (Color online) Left: transmission of the probe with the pump applied at two different positions indicated by the red arrow in the inhomogeneous line. Right: hyperfine structure of the electronic ground state $^4I_{15/2}$ and the two identified Λ-like systems.

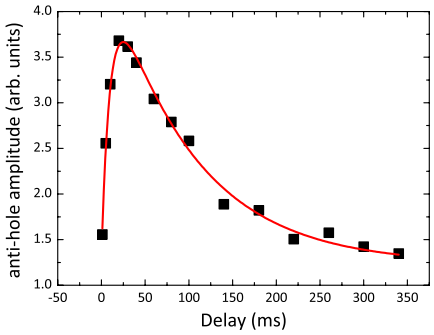

FIG. 6. (Color online) Evolution of the antihole amplitude as the delay between the pump and the probe pulse is varied. The solid line is a second-order exponential decay fit with time constants 10 and 97 ms.

population transfer from the hyperfine sublevel excited by the pump to the one excited by the probe using the optical pumping effect. For this purpose we have measured the evolution of the amplitude of the antiholes in both systems which is an indication of the population of the ions in the hyperfine sublevel $|3\rangle$, for system 1, and sublevel $|2\rangle$ for system 2.

First, both systems are excited by a 60 ms square pump pulse. After a delay τ, a weak probe pulse is applied. Its frequency is tuned around the antihole. Figure 6 shows for system 1 the evolution of the amplitude of the antihole as the delay between the pump pulse and the probe pulse is varied. A maximum antihole amplitude is reached for a delay $\tau \simeq 28$ ms, at which the population in the probe hyperfine sublevel reaches a maximum value. The evolution of the antihole amplitude is driven by two-time constants: the excited state lifetime T_1^{opt} and the population relaxation time T_1^{hyp} among the hyperfine sublevels of the ground state. The continuous line in Fig. 6 is a second-order exponential decay fit with time constants $T_1^{opt}=10$ ms and $T_1^{hyp}=97$ ms. The optical lifetime $T_1^{opt}=10$ ms is consistent with values reported in Ref. 13 and gives a confidence on the value of the hyperfine lifetime.

III. ELECTROMAGNETICALLY INDUCED TRANSPARENCY

Electromagnetically induced transparency is implemented in the two Λ-like systems identified by SHB spectroscopy and EPR spectroscopy. Both systems are formed by two hyperfine sublevels of the ground state and a hyperfine sublevel of the excited state. In order to achieve EIT, the coupling and the probe fields should simultaneously excite the Λ-like systems. For this purpose, both fields are generated by the same laser as depicted is Fig. 7. The source we use is the one labeled probe in the SHB spectroscopy experiment in Sec. II B. The laser beam is first split into an 80% and a 20% relative intensity beams in order to obtain pump/coupling and probe, respectively. The frequency detuning ν_{rf} between

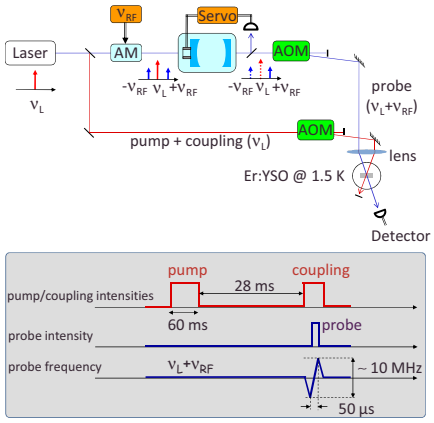

FIG. 7. (Color online) Scheme of the experimental setup used to observe EIT. In the gray box are indicated the pulse sequences applied to the AOMs in order to control the intensities and the duration of the pump, control, and probe pulses. The fine frequency tuning of the probe frequency is achieved by changing the RF frequency of the AOM in the optical path of the probe.

the coupling and the probe corresponding to the ground-state hyperfine splitting ($|3\rangle \leftrightarrow |4\rangle$ or $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ in Fig. 5) is obtained by modulating the 20% intensity beam with a fiberd Mach-Zehnder interferometer (JDS Uniphase X5) driven by a sine wave RF signal supplied by an analog signal generator Agilent E4428C. Through this modulation, two spectral components at $\pm\nu_{rf}$ around the laser frequency ν_L are created in the spectrum of the laser. The probe field is then obtained by filtering the modulated beam using a homemade Fabry-Perot cavity (FPC) locked on the spectral component $\nu_L + \nu_{rf}$ or $\nu_L - \nu_{rf}$ depending on the Λ-like system under investigation. The FPC has a finesse of 260 and a free spectral range of 3.3 GHz. Through a careful mode matching of the incoming beam, we have successfully achieved more than 95% coupling efficiency in the FPC. Before they recombine in the crystal located in the cryostat, the two beams go through AOMs in order to change at will their intensities and their pulse durations. In the gray box of Fig. 7, the sequence applied to the AOM on the optical path of the 80% intensity beam is indicated. A first 60 ms long pulse called pump is applied in order to transfer the populations to the right hyperfine sublevel. The frequency of the pump ν_L is tuned to point A (or B) of Fig. 2 in order to be in resonance with transition $|6\rangle \leftrightarrow |4\rangle$ (or $|5\rangle \leftrightarrow |1\rangle$). 28 ms later a second pulse, the coupling, is applied to the same transition. In the gray box is also indicated both amplitude and frequency evolution of the probe. Most of the time the probe frequency $\nu_L + \nu_{rf}$ is in resonance with transition $|6\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ (or $|5\rangle \leftrightarrow |2\rangle$). The probe pulse is turned on a short time after the coupling pulse. Its duration is 50 μs and its frequency is tuned by few megahertz around the resonance. It is achieved by changing the frequency of the 80 MHz RF signal driving the AOM. The pulse sequence is then repeated at a rate of 1 Hz in order to let a time longer than $T_1^{hyp}=97$ ms for the atomic systems

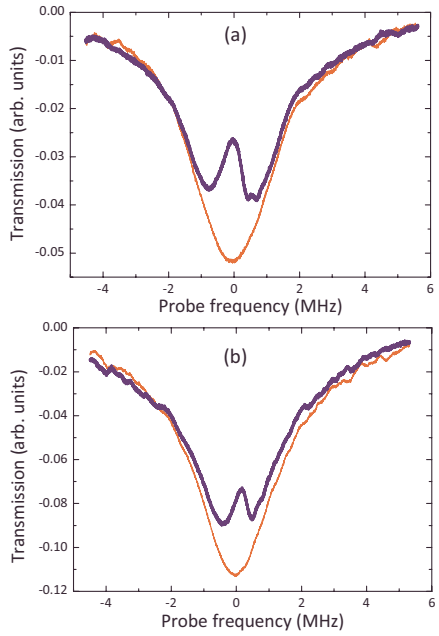

FIG. 8. (Color online) Probe transmission with (thick line) and without (thin line) the control pulse. In both cases the pump is applied 28 ms prior to the control and probe pulses. (a) Observation of EIT in Λ-like system 1. (b) Observation of EIT in Λ-like system 2.

to get back to their initial state between successive measurements.

Figure 8 shows the transmission of the probe as its frequency is tuned by few megahertz around the resonance. The thin line shows the spectrum is obtained when the coupling pulse is not applied. It shows a reduction in the transmission (antiholes in Fig. 5 indicated by the arrows labeled probe) due to population transfer induced by the pump pulse applied to the erbium ions 28 ms prior to the probe pulse. The full width at half maximum (FWHM) of the antihole is about 3.0 MHz. When the coupling pulse is applied simultaneously with the probe a narrow transparency window with a FWHM of about 900 kHz appears at the center of the antihole. It is represented by the thick line in Fig. 8. This relatively narrow transmission peak is attributed to EIT effect. Its amplitude shows an increase in the transmission by about 50% (38%) for the first (second) Λ-like system relatively to the amplitude of the antihole.

The linewidth of the EIT feature depends on the optical and hyperfine coherences, the intensity of the coupling field, and the inhomogeneous broadening of the hyperfine sublevels. Extra experimental investigations have to be conducted in order to identify precisely the origin of the width of the EIT line. Concerning the amplitude of the EIT, though an increased transmission is observed in our demonstration, the amplitude is still far from reaching the ideal case of an absolute transmission of 100%. This limitation is mainly due, as for the EIT linewidth, to the fact that the coherence of the hyperfine sublevels is finite. However, as pointed out in the introduction, the coherence can be manipulated by reducing the erbium concentration and/or by applying an appropriate external dc magnetic field as it has been successfully achieved in praseodymium-doped crystal.[5]

The present demonstration is achieved without any sophisticated system preparation. This constitutes another significant limitation on the efficiency of the EIT effect since the Λ-like systems under consideration are not ideal closed three-level systems with all population in the sublevel excited by the probe. Indeed, all the fundamental hyperfine sublevels are populated even at 1.5 K. Several techniques can then be implemented in order to prepare more efficiently the systems by having initially all the ions in the hyperfine sublevel on which EIT is observed. This can, for example, be achieved using stimulated Raman adiabatic passage. This process is independent on the spontaneous emission and has been shown to be very efficient[14,15] in transferring all the population from one ground-state hyperfine sublevel to another hyperfine sublevel without going through optical excitation of the excited state.

IV. CONCLUSION

By using spectral hole burning and electron-paramagnetic-resonance spectroscopies we have studied the hyperfine structure of $^{167}Er^{3+}$ ions embedded in an Y_2SiO_5 crystalline matrix. Among a large variety of ground-state hyperfine sublevels we have identified 10Λ-like systems around 1.5 μm. In two of them we have demonstrated an increase in the transparency in a narrow spectral window with a linewidth three times narrower than that of the antihole, feature induced by a pumping process. This effect, clearly associated to EIT, is obtained without implementing any magnetically assisted or sophisticated state preparation. The increase in the transmission associated to EIT, by 50% and 38% depending on the Λ-like system, could be further improved by a better state preparation.

*Corresponding author: kamel.bencheikh@lpn.cnrs.fr; http://www.lpn.cnrs.fr/
†Present address: CNAM, 61 rue du Landy, 93210 La Plaine Saint Denis, France.
‡Deceased.

[1] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, Rev. Mod. Phys. **77**, 633 (2005).
[2] K. Honda, D. Akamatsu, M. Arikawa, Y. Yokoi, K. Akiba, S. Nagatsuka, T. Tanimura, A. Furusawa, and M. Kozuma, Phys. Rev. Lett. **100**, 093601 (2008).

[3] J. Appel, E. Figueroa, D. Korystov, M. Lobino, and A. I. Lvovsky, Phys. Rev. Lett. **100**, 093602 (2008).
[4] R. M. Macfarlane and R. M. Shelby, *Spectroscopy of Solids Containing Rare Earth Ions* (Elsevier Science BV, North-Holland, 1987), Chap. 3, p. 51.
[5] E. Fraval, M. J. Sellars, and J. J. Longdell, Phys. Rev. Lett. **95**, 030506 (2005).
[6] J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars, and N. B. Manson, Phys. Rev. Lett. **95**, 063601 (2005).
[7] P. Goldner, O. Guillot-Noël, F. Beaudoux, Y. Le Du, J. Lejay, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët, L. Rippe, A. Amari, A. Walther, and S. Kröll, Phys. Rev. A **79**, 033809 (2009).
[8] E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, J. A. Levenson, and V. Rouget, Phys. Rev. Lett. **95**, 143601 (2005).
[9] T. Böttger, C. W. Thiel, R. L. Cone, and Y. Sun, Phys. Rev. B **79**, 115104 (2009).
[10] O. Guillot-Noël, P. Goldner, Y. Le Du, E. Baldit, P. Monnier, and K. Bencheikh, Phys. Rev. B **74**, 214409 (2006).
[11] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy* (Springer-Verlag, Berlin, 1996).
[12] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward, Appl. Phys. B: Lasers Opt. **31**, 97 (1983).
[13] T. Böttger, Y. Sun, C. W. Thiel, and R. L. Cone, Phys. Rev. B **74**, 075107 (2006).
[14] J. Klein, F. Beil, and T. Halfmann, Phys. Rev. Lett. **99**, 113003 (2007).
[15] A. L. Alexander, R. Lauro, A. Louchet, T. Chanelière, and J. L. Le Gouët, Phys. Rev. B **78**, 144407 (2008).

Ultraslow Light Propagation in an Inhomogeneously Broadened Rare-Earth Ion-Doped Crystal

E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, J.A. Levenson, and V. Rouget

Physical Review Letters **95**, 143601 (2005)

Ultraslow Light Propagation in an Inhomogeneously Broadened Rare-Earth Ion-Doped Crystal

E. Baldit, K. Bencheikh,* P. Monnier, J. A. Levenson, and V. Rouget

Laboratoire de Photonique et de Nanostructures LPN-CNRS UPR 020, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France

(Received 4 March 2005; published 26 September 2005)

We show that coherent population oscillations effect allows us to burn a narrow spectral hole (26 Hz) within the homogeneous absorption line of the optical transition of an erbium ion-doped crystal. The large dispersion of the index of refraction associated with this hole permits us to achieve a group velocity as low as 2.7 m/s with a transmission of 40%. We especially benefit from the inhomogeneous absorption broadening of the ions to tune both the transmission coefficient, from 40% to 90%, and the light group velocity from 2.7 m/s to 100 m/s.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.95.143601 PACS numbers: 42.50.Gy, 32.80.Qk, 42.65.−k

Reduction of the optical group velocity by several orders of magnitude relative to the speed of light propagating in vacuum was demonstrated in recent years in diverse media including Bose-Einstein condensate, cold atoms [1,2], vapors [3,4], and solids [5–8]. In addition to the strangeness of producing light propagating at speeds as low as a few m/s, slow light propagation (SLP) is at the very heart of new fundamental and applied fields of research in nonlinear and quantum optics. From the nonlinear optical side, SLP allows us to strongly enhance the light-matter interaction time. Moreover, this interaction time can be continuously tuned to produce optical buffers and variable delay lines for optical networks. From the quantum optical point of view, SLP should allow, under specific conditions, classical and quantum properties of an electromagnetic field to be mapped into an atomic system [9]. The fundamental physical idea at the origin of SLP is the creation of a very narrow spectral hole in the homogeneous absorption profile. As stipulated by Kramers-Krönig relations, this narrow spectral hole is accompanied by a strong dispersion of the index of refraction inducing a low group velocity and an increase of the transmission. These two aspects are crucial in the choice of the atomic system and the coherent interaction inducing SLP.

The first direct demonstration of SLP [1–5] was achieved via electromagnetically induced transparency (EIT) [10]. It was originally implemented by applying a secondary control field to eliminate the linear absorption of a resonant probe field through an otherwise absorbing medium. The standard scheme for EIT is a three-level Λ system, where the probe field drives the system from one of the ground states and the control field from the second ground state. The width of the spectral hole burned in the homogeneous absorption profile is proportional to the inverse of the dephasing time of the ground state. Another physical effect recently used to reduce the speed of light to as low as a few tens of meters per second is coherent population oscillations (CPOs) [6–8]. In contrast to EIT, the CPO [11,12] effect is easily achieved in a two-level system which is excited by a "strong" pump field E_p oscillating at ω_p, along with a weak probe field E_s oscillating at $\omega_s = \omega_p + 2\pi\delta$. In this configuration, the two-level system population oscillates at the pump-probe beat frequency $\delta = (\omega_s - \omega_p)/2\pi$. Such oscillations become significant when δ is less than $1/T_1$, where T_1 is the relaxation lifetime of the excited state. As a result a narrow spectral hole, whose width is proportional to $1/T_1$, is induced in the homogeneous absorption profile of the probe field. M. S. Bigelow *et al.* [6] used this effect in a 7.25 cm long ruby crystal at room temperature to reduce the group velocity of light down to 57 m/s with a spectral hole width of 36 Hz and a rather low total transmission of about 0.1%. More recently, P. C. Ku *et al.* [8] showed in GaAs/AlGaAs semiconductor quantum wells a high transmission of about 50% for a group velocity of 9600 m/s. Though this value is low compared to the speed of light in vacuum, it is still limited by the rather short relaxation time $T_1 \sim 1$ ns.

In this Letter, we report on SLP induced by the CPO effect in a crystal insulator doped with rare-earth ions. Thanks to the long-lived excited state of the ions which is at the origin of the very narrow spectral hole and of the steep dispersion of the refraction index, we successfully achieved ultraslow light propagation in a solid-state material. The corresponding group velocities are comparable to those achieved in SLP via EIT in a Bose-Einstein condensate [1,2]. The optical intensities we use are as weak as the intensities concerned in Refs. [1,2] and are orders of magnitude weaker than those used in Refs. [6,8] for SLP via the CPO effect. In contrast to Refs. [6–8], we investigate in details the influence of the power and the absorption coefficient on the SLP. More importantly, we show that the inhomogeneous broadening inherent to rare-earth ion-doped crystals constitutes an additional control parameter we are able to manipulate to tune both the group velocity and the transmission coefficient.

The crystal used in our experiments is supplied by Scientific Materials Inc., and it consists in an Yttrium oxyorthosilicate (Y_2SiO_5) lattice doped with 0.005 at. % of $^{167}Er^{3+}$ ions. The optical transition between the fundamental state $^4I_{15/2}$ and the excited state $^4I_{13/2}$ of the erbium ions is at 1536.1 nm. The crystal temperature is maintained

 © 2005 The American Physical Society

at 1.5 K in a liquid Helium cryostat in order to reduce the homogeneous linewidth to the sub-MHz level. However, due to the static electric field strength in the crystal an inhomogeneous broadening of about $\Gamma_{\rm inh} = 1.3$ GHz is present and prevents the direct measurement of the homogeneous spectral line. Using the spectral hole burning method, we measure the lifetime T_1 of the excited state to be 8 ms. Photon echo technique is used to measure the dephasing time T_2 which is found to be about 3 μs at 1.5 K, a rather short value in comparison with T_1.

From the theoretical point of view, the pump beam allows us to selectively excite a narrow portion of ions within the inhomogeneous line: those in resonance with the pump frequency. Such an ensemble of ions can be described by the formalism developed in Refs. [6,11], where a two-level system is driven by $E_p e^{-i\omega_p t} + E_s e^{-i\omega_s t}$ with $\omega_s = \omega_p \pm 2\pi\delta$. Following the mathematical analysis in Refs. [6,11], expressions of the absorption $\alpha(\delta)$ and the index of refraction $n(\delta)$ are derived for $T_2 \ll T_1$ from the off diagonal density matrix elements oscillating at δ,

$$\alpha(\delta) = \frac{\alpha_0}{1+S}\left[1 - \frac{S(1+S)}{(2\pi\delta T_1)^2 + (1+S)^2}\right], \quad (1)$$

and

$$n(\delta) = 1 + \frac{\alpha_0 c T_1}{2\omega_p}\frac{S}{1+S}\frac{2\pi\delta}{(2\pi\delta T_1)^2 + (1+S)^2}. \quad (2)$$

The different parameters involved in Eqs. (1) and (2) are the unsaturated absorption coefficient α_0 of the two-level system and the saturation parameter S defined as the ratio of the pump intensity and the saturation intensity. The half width at half maximum (HWHM) of the spectral hole induced by the CPO effect is theoretically given by

$$\Gamma_{\rm HWHM} = \frac{1}{2\pi T_1}(1+S). \quad (3)$$

The main concern of this Letter is the determination of the group velocity v_g experienced by the probe field propagating in the crystal of length L, or equivalently the time delay τ accumulated by the probe relative to a reference beam. The group velocity is related to the delay τ by $v_g = L/\tau$. Using Eq. (2) and $c/v_g = n_0 + (\omega_p/2\pi)\partial n/\partial\delta$, we obtain the theoretical expression

$$\tau(\delta) \simeq \frac{L}{c}\frac{\omega_p}{2\pi}\frac{n(\delta) - n(-\delta)}{2\delta} = \frac{\alpha_0 T_1 L}{2}\frac{S}{1+S}\frac{1}{(2\pi\delta T_1)^2 + (1+S)^2}, \quad (4)$$

for the time delay.

According to Eq. (3), the width of the spectral hole associated with $T_1 = 8$ ms is expected to be of the order of few tens of Hz. In this case, the frequency of the probe field is so close to the pump frequency that the observation of the narrow spectral hole is prevented by the relative frequency fluctuations of the pump and the probe laser sources. However, it is possible to overcome this problem by generating both the pump and the probe fields from a single laser source whose intensity is modulated at a frequency δ with a $1 + m\cos(2\pi\delta t)$ wave function, where $m < 1$ is the modulation depth. Indeed, the strong mean value of the modulated laser signal plays the role of the pump whereas the Fourier sidebands of the modulation at $\pm\delta$ act as the weak probe. Such an approach has been successfully used in Refs. [6,7].

The scheme of our experimental setup is depicted in Fig. 1. The light source we use is a 2 kHz linewidth, continuous-wave fiber laser emitting at 1536.1 nm. The combination of the half-wave plate HWP1 and the polarizing beam splitter PBS allows us to control the laser power. By driving the rf power of an acousto-optic modulator (AOM) with a $1 + m\cos(2\pi\delta t)$ wave function, a 10% intensity modulation depth is applied to the first order diffracted field. After the AOM, the beam splitter BS allows us to separate a reference beam from the main beam which is sent through the crystal located in the cryostat. Thanks to a 250 mm lens in front of the cryostat, the main beam is focused down to a waist of 540 μm in the 3 mm long crystal. The main and the reference beams are then detected using InGaAs photodiodes. The ac components of the photocurrents are demodulated using lock-in amplifiers whose outputs (amplitudes and phases) are stored in a computer, simultaneously with the dc components, after data sampling and data averaging over more than 10000 samples. The delay τ of the weak probe is deduced from the main beam and reference beam phases, ϕ_m and ϕ_r, given by the lock-in amplifiers: $\tau = (\phi_m - \phi_r)/2\pi\delta$.

Figure 2 shows the measured delay τ for different modulation frequencies δ as a function of the pump power. The pump field wavelength is tuned to the maximum of the absorption in the inhomogeneous profile. The continuous lines are the plots of the theoretical expression Eq. (4) of the delay, where $T_1 = 8$ ms, $L = 3$ mm. The unsaturated

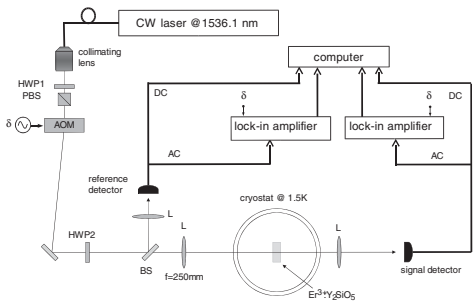

FIG. 1. Scheme of the experimental setup: HWP1 and HWP2 are half-wavelength plates; PBS, polarizing beam splitter; AOM, acousto-optical modulator driven by a sinusoidal wave function oscillating at δ; BS, beam splitter; L, lens; ac, alternating current; dc, direct current.

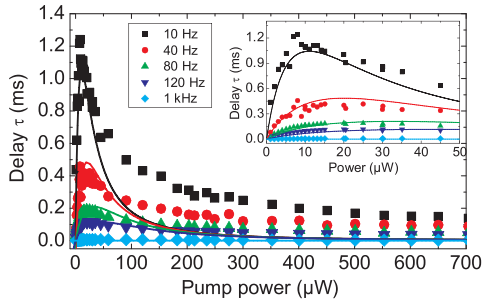

FIG. 2 (color online). Experimental (points) and theoretical (continuous lines) delay τ of the probe as a function of the pump power for different modulation frequencies δ. Inset: zoom at low pump powers.

absorption coefficient at the maximum of the inhomogeneous line, $\alpha_0 = 6.5\ \mathrm{cm}^{-1}$, is determined by measuring the linear absorption in the crystal of a weak laser beam as a function of its wavelength. Care is taken in tuning the frequency of the laser over few GHz ($> \Gamma_{\mathrm{inh}}$) within a sufficiently short time scale (5 ms) in order to avoid any saturation effect. As shown in Fig. 2, the delay τ tends to zero in the low pump power limit, $S \ll 1$, because the number of the excited ions is still not enough to induce the coherent effect. When the pump power is increased, $S \gg 1$, the delay τ decreases because of the absorption saturation: the number of the excited ions contributing to the CPO effect is reduced and the spectral hole is power broadened leading to a less sharp dispersion. A discrepancy between theory and experiment when $S \gg 1$ [13] is clearly visible. The main reason is that the theory used to derive Eq. (4) considers a homogeneously broadened two-level system, whereas the erbium-doped crystal we use also shows a strong inhomogeneous broadening. In 1978, M. Sargent III [12] pointed out a noteworthy difference between the absorption evolution of a homogeneous system and that of an inhomogeneous two-level system when coherently driven in a pump-probe configuration. This is particularly true at high power levels, where the absorption in the inhomogeneous two-level system does not completely saturate unlike in the homogeneous case. We have experimentally checked this point.

Clearly a full theoretical analysis of CPO effect in an inhomogeneous two-level system has to be done to rigorously describe our experiment. This is of a great importance to optimize the SLP under "high" pump powers. Nevertheless, the main features of SLP results in our experiment, under low pump powers, are captured by the simplistic model we adopt.

Back to Fig. 2 we can see that a maximum delay $\tau_{\max}$ is reached for an optimum value of $S(\delta)$ independent on α_0. It is $S \simeq 1/2$ in the low frequency limit ($\delta < 1/T_1$) according to theory. Experimentally, $\tau_{\max}^{\mathrm{exp}} = 1.1 \pm 0.1$ ms at $\delta = 10$ Hz which is in a good agreement with the theoretical value $\tau_{\max}^{\mathrm{the}} = 1.04$ ms derived from Eq. (4). The delay $\tau_{\max}^{\mathrm{exp}}$ is obtained for a pump power of 12 μW measured in front of the cryostat which corresponds to an intensity of 2.1 $\mathrm{mW/cm}^2$ on the crystal. In the following, we will work at this particular pump intensity in order to maximize the CPO effect. This intensity is rather low in comparison with former CPO experiments [6–8] where $\sim\mathrm{kW/cm}^2$ are required, and is comparable to the intensities involved in SLP in Bose-Einstein condensate [1,2]. The group velocity v_g associated with $\tau_{\max}^{\mathrm{exp}}$ is 2.7 ± 0.2 m/s. To our knowledge, it is the slowest group velocity ever achieved in a solid. Indeed, according to our results, we reduce the group velocity by a factor $n_g = c/v_g = 10^8$. In comparison, the reduction is less than 5×10^6 in the Ruby and Alexandrite crystals [6,7] and about 10^4 in the semiconductor quantum wells [8].

In order to determine the linewidth of the narrow spectral hole which is at the origin of the large dispersion of the refraction index and hence of the SLP, we measure the delay as well as the transmission of the weak sidebands as a function of the modulation frequency (the squares in Fig. 3). Like in the previous measurement, the wavelength of the pump is tuned to the maximum of the absorption. The inset in Fig. 3 is the transmission of the weak sidebands normalized to the transmission that is observed in a hole burning experiment. Indeed, a spectral hole is burned by the pump field in the inhomogeneous transmission profile of the probe field. Because of CPO effect, an additional increase of the transmission is observed when δ is smaller than $1/T_1$. This increase is about 55% at $\delta = 10$ Hz. At frequencies δ larger than $1/T_1$, the effect of CPO becomes negligible. The continuous lines in Fig. 3 are the theoretical plots derived from Eqs. (1) and (4) without adjustable parameters. We can deduce from the inset in Fig. 3 a 26 Hz HWHM of the spectral hole, which is rather close to the theoretical value of 30 Hz.

One of the fundamental points we are addressing in this Letter is the experimental exploration and exploitation of

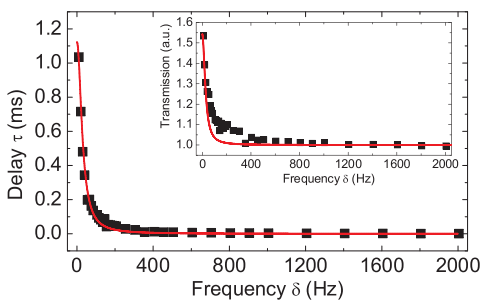

FIG. 3 (color online). Experimental (squares) and theoretical (continuous lines) delay τ of the probe as a function of the modulation frequency δ and for a fixed pump power (12 μW) with $S = 1/2$. Inset: the corresponding normalized transmission.

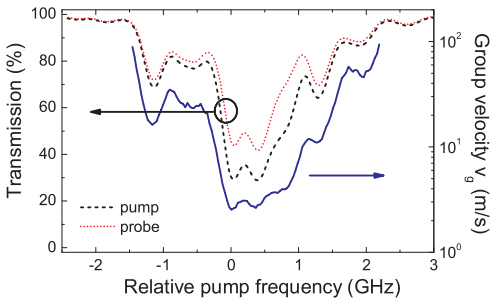

FIG. 4 (color online). The experimental group velocity (continuous line), pump (dashed line), and probe (dotted line) transmissions as a function of the pump frequency. The modulation frequency δ is fixed at 10 Hz and the pump power is such that $S = 1/2$.

the dependence of the group velocity reduction on the absorption coefficient. Indeed, unlike the other materials that have been investigated up to now [6–8], our crystal shows an inhomogeneous absorption broadening. By tuning the pump frequency over this inhomogeneous profile, we are able to address different erbium ion concentrations and hence different absorption coefficients. In Fig. 4, the continuous line represents the measured light group velocity as a function of the pump frequency detuning relative to the pump wavelength at the maximum of the absorption. We also plot the transmission of the pump field (dashed line) as well as the transmission of the probe field (dotted line). The frequency of the probe is detuned by $\delta = 10$ Hz from the pump frequency. The shape followed by the group velocity is similar to that of the transmission, clearly indicating the dependence of v_g on the absorption strength in the erbium-doped crystal. However, a careful analysis of the results shows that v_g is not proportional to the inverse of the absorption. This might be due to the inhomogeneous broadening. From the practical point of view, Fig. 4 indicates that the inhomogeneous broadening is an additional parameter which allows the engineering of the group velocity. Indeed, thanks to the inhomogeneous broadening in our crystal, v_g can easily be varied from 3 m/s to 100 m/s by tuning the pump wavelength. The highest SLP is achieved at the maximum of the absorption with a probe transmission of 40%. Moreover, an important reduction of the group velocity is still obtained for high probe transmission. For example, when the relative pump frequency is set at 2 GHz (see Fig. 4), a group velocity of 58 m/s is measured with a transmission of about 88%.

It is worth noting that the delay τ is proportional to the product $\alpha_0 T_1 L$. Consequently, the reduction of the group velocity n_g varies like the product $\alpha_0 T_1 c$. The slowest light propagation will be then obtained in long-lived atomic systems with high absorption coefficient. However, in order to obtain a non-negligible transmission, $T \sim e^{-\alpha_0 L}$, one has to compensate for the large coefficient α_0 by choosing a short medium. It is, for example, possible to obtain a 88% transmission in the erbium-doped crystal with the lowest group velocity, 3 m/s, by using a crystal having a thickness of about 200 μm pumped at the maximum of the absorption profile [14]. This means that transparency can be reached while keeping the group velocity at its minimum value.

In conclusion, the implementation of CPO in erbium-doped crystals enables us to achieve ultra SLP. The pump intensities involved are 6 order of magnitude smaller than in former CPO experiments [6–8] and comparable to the one involved in EIT in ultracold atomic gas [1,2]. We demonstrate that the inhomogeneous broadening, an inherent effect of the crystalline matrix, does not degrade the slow light propagation effect. It can instead be used to spectrally tune both the slow light propagation effect and the transmission. Group velocities ranging from 3 to 100 m/s are achieved with transmission efficiencies ranging from 40% to 90%.

We are grateful to V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and P. Goldner for their collaboration in the different spectroscopic measurements. We also thank R. Raj, N. Belabas, and A. Giacomotti for helpful comments on the manuscript.

*Email address: kamel.bencheikh@lpn.cnrs.fr
Electronic address: www.lpn.cnrs.fr

[1] L. V. Hau, S. E. Harris, Z. Dutton, and C. H. Behroozi, Nature (London) **397**, 594 (1999).
[2] S. Inouye, F. F. Low, S. Gupta, T. Pfau, A. Gorlitz, T. L. Gustavson, D. E. Pritchard, and W. Ketterle, Phys. Rev. Lett. **85**, 4225 (2000).
[3] A. Kasapi, M. Jain, G. Y. Yin, and S. E. Harris, Phys. Rev. Lett. **74**, 2447 (1995).
[4] M. M. Kash, V. A. Sautenkov, A. S. Zibrov, L. Hollberg, G. R. Welch, M. D. Lukin, Y. Ros-tovtsev, E. S. Fry, and M. O. Scully, Phys. Rev. Lett. **82**, 5229 (1999).
[5] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, and M. S. Shahriar, Phys. Rev. Lett. **88**, 023602 (2002).
[6] M. S. Bigelow, N. N. Lepeshkin, and R. W. Boyd, Phys. Rev. Lett. **90**, 113903 (2003).
[7] M. S. Bigelow, N. N. Lepeshkin, and R. W. Boyd, Science **301**, 200 (2003).
[8] P. C. Ku, F. Sedgwick, C. J. Chang-Hasnain, P. Palinginis, T. Li, H. Wang, S. W. Chang, and S. L. Chuang, Opt. Lett. **29**, 2291 (2004).
[9] M. D. Lukin, Rev. Mod. Phys. **75**, 457 (2003).
[10] S. E. Harris, Phys. Today **50**, No. 7, 36 (1997).
[11] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, Inc., Boston, 1992), p. 191.
[12] M. Sargent III, Phys. Rep. **43**, 223 (1978).
[13] We experimentally checked that the increase of the sidebands' intensity as the pump power is increased is not responsible for the discrepancy in Fig. 2.
[14] We checked this dependence on L by comparing experimental results obtained in a 1 and a 3 mm long crystal.

Nanocavity Linewidth Narrowing and Group Delay Enhancement by Slow Light Propagation and Nonlinear Effects

P. Grinberg, K. Bencheikh, M. Brunstein, A.M. Yacomotti, Y. Dumeige, I. Sagnes, F. Raineri, L. Bigot, and J.A. Levenson

Physical Review Letters **109**, 113903 (2012)

Nanocavity Linewidth Narrowing and Group Delay Enhancement by Slow Light Propagation and Nonlinear Effects

P. Grinberg,[1] K. Bencheikh,[1] M. Brunstein,[1] A. M. Yacomotti,[1] Y. Dumeige,[2] I. Sagnes,[1] F. Raineri,[1] L. Bigot,[3] and J. A. Levenson[1]

[1]*Laboratoire de Photonique et de Nanostructures CNRS-UPR020, Route de Nozay, F-91460 Marcoussis, France*
[2]*Université Européenne de Bretagne, CNRS Foton, UMR 6082, Enssat, BP 80518 Lannion cedex, France*
[3]*PhLAM/IRCICA, CNRS-UMR8523/USR3380, Université Lille 1, 59658 Villeneuve d'Ascq cedex, France*

(Received 1 February 2012; published 13 September 2012)

Slow light induced by coherent population oscillations and cavity dispersive nonlinear response are combined achieving 2 orders of magnitude enhancement of the group delay and an equivalent decreasing of the spectral linewidth of a $L3$ two-dimensional photonic crystal nanocavity.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.113903 PACS numbers: 42.55.Sa, 42.50.Gy, 42.65.Pc

The introduction of a strongly dispersive material in an optical cavity was proposed as a way to significantly narrow the cavity linewidth [1,2] and to enhance the cavity lifetime [3]. The main mechanisms to achieve the strong dispersion in atomic media are coherent nonlinear interactions such as population trapping [1] and electromagnetically induced transparency (EIT) [2,4]. In both cases, the interaction of the atoms with a driving (pump) field and a signal (probe) field frequency tuned to the cavity resonance induces a steep refractive index dispersion seen by the signal. This leads to a strong decrease of the group velocity at the origin of the linewidth narrowing of the optical resonance. In atomic physics, EIT-based linewidth narrowing has been experimentally demonstrated in a ring cavity crossed by a cesium atomic beam [1] or containing a rubidium vapor [4]. Coherent population oscillations (CPO) effect is also used to produce a strong refractive index dispersion. In contrast with EIT that requires particular three-level system arrangements, CPO can be implemented in any two-level system material [5–8] and two-level like system such as semiconductor quantum wells and dots [9–12]. Despite its simplicity, room temperature operation and wavelength tunability, it is only recently [13] that CPO has been proposed to achieve linewidth narrowing.

In order to enhance the cavity lifetime, one can also benefit from the strong nonlinear index dispersion of an active medium. This effect is induced by third order optical nonlinearities, which have been shown to be particularly strong in semiconductor nanostructures such as quantum wells [14]. Two main avenues are thus offered to improve the temporal and spectral response of a cavity: the atomic-like induced index dispersion and the nonlinear refractive index dispersion. Here we aim at combining these two approaches in solid state semiconductor nanocavities. Micro- and nanocavities have recently attracted much attention due to their capabilities in strongly confining light for long times in a very tiny spatial region [15,16]. Ultimately, ultralow cavity volumes and ultrahigh Q-factors may result in suitable conditions to enhance light-matter interaction with applications in nonlinear optics [17–19], biosensing [20], microwave filtering [21], pulse storage [22–24], quantum information, and quantum electrodynamics [25,26], potentially in integrated platforms.

In this Letter we show strong linewidth narrowing and enhancement of the group delay time in a two-dimensional (2D) photonic crystal (2D PhC) nanocavity with InP-based quantum wells (QWs) as active, absorptive, two-level-like nonlinear medium. We experimentally implement and theoretically study the coherent and nonlinear interaction, namely CPO and carrier induced nonlinear refractive index change, in the emblematic case of a $L3$ (three hole missing) nanocavity. Before describing our experimental results, let us discuss a simple and intuitive model consisting of an optical cavity containing a material with both dispersive and nonlinear effects. We consider a Fabry-Perot cavity of length L, with finesse $\mathcal{F}$ and partially filled with a medium with a group index n_g due to the CPO effect and a negative nonlinear index n_2. The cavity is simultaneously injected with a strong pump beam and a weak signal with circular frequencies ω_p and ω_s, respectively. Under the good cavity and weak nonlinear approximations, the group delay experienced by the signal, for $\omega_s \sim \omega_p$, is

$$\tau_g \sim \frac{2\mathcal{F}Ln}{\pi c}\left[1 + \Gamma\left(\frac{n_g}{n} - 1\right)\right]\left[1 + \Gamma\kappa n_2 |A_p|^2 \Delta\omega\right], \quad (1)$$

where n is the linear index of refraction, A_p the intracavity pump field amplitude, $\Delta\omega$ the pump frequency detuning with respect to the cavity resonance, Γ is the confinement factor for both the CPO and the nonlinear effects, and $\kappa = 2\epsilon_0\omega_p\mathcal{F}n^2L^2/(\pi c)$. This expression shows that the total group delay has three contributions: the passive cavity delay ($\sim 2\mathcal{F}Ln/(\pi c)$), the CPO effect given by the group index n_g, and the nonlinear term proportional to n_2. Notice that the latter vanishes close to the resonance frequency and it is maximum near the maximum slope of $|A_p|^2$ at the high frequency side. A complete theoretical analysis taking

 © 2012 American Physical Society

into account the dynamical equations of the semiconductor active cavity will be carried out later on.

The cavity is a $L3$ 2D PhC nanocavity formed by missing three holes on an otherwise periodical hole lattice. Such a cavity is a good combination of small cavity mode volume, $V \sim (\lambda/n)^3$ and reasonable high Q-factors. With negligible fabrication defects and absorption, the latter can be increased from 10^3 to about 10^5 by the engineering of the size and the position of the holes surrounding the cavity [27]. However, we start here from a $L3$ nanocavity with moderate Q-factor, ~4000, easily attainable and reproducible. Shown in Fig. 1(a), the sample is a 260 nm-thick InP semiconductor membrane having 4 InGaAsP/InGaAs QWs grown by metal-organic vapor phase epitaxy. The 2D PhC is a hexagonal air-hole lattice in the InP membrane with a lattice constant $a = 450$ nm, a hole radius of 120 nm, and the two end holes are displaced along the cavity axis by $0.15a$ in order to increase the Q-factor. Preliminarily frequency domain measurements, have shown that the cavity has an intrinsic Q-factor $Q_0 = 4030$. This intrinsic Q-factor is a combination of a radiation loss limited Q-factor $Q_{\mathrm{rad}} = 6300$ and of an absorption loss limited Q-factor $Q_{a0} = 11\,200$. The absorption coefficient of the QWs is $\alpha_0 = 54\ \mathrm{cm}^{-1}$ at the working wavelengths around 1570 nm and the overlap of the confined mode and the QWs is $\Gamma = 20\%$.

For the experimental demonstrations, see Fig. 1(b), a 150 kHz linewidth, fibered continuous-wave (cw) laser emitting up to 15 mW and tunable from 1490 nm to 1610 nm is used [12]. Coupling light into such nanocavities is a particular challenging issue. An evanescent coupling of about 7% [28] is achieved using a tapered optical fiber (diameter of ~1.5 μm) located on the top of the membrane above the $L3$ cavity. The resulting loaded Q-factor is $Q_l = 3752$, corresponding to a cavity lifetime $\tau_l = 3.1$ ps. In order to avoid thermal effects, the cw laser is modulated with a fibered acousto-optic modulator producing 100 ns duration square pulses repeated every 20 μs, longer than the thermal dissipation time [29]. The CPO effect is induced by using a sine-wave intensity modulation with a time period longer than electron-hole recombination time $\tau_r = 200$ ps [5,7]. By driving a fibered Mach-Zehnder interferometer with a rf signal at frequency δ, a 10% intensity modulation depth is applied to the square pulses. In the Fourier space, the average intensity and the weak modulation play respectively the role of the pump and the probe exciting the absorbing QWs in the CPO regime as long as $\delta < 1/\tau_r$. The power that is launched into the tapered fiber, about 1/200 of the nominal laser power, is of the order of few μW, comparable to the saturation power of the QWs. The measurement of the delay is achieved using a home made lock-in detection whose outputs are sensitive to the in- and out-of-phase quadratures of the modulation. The resonant group delay (obtained for $\delta = 0$) induced by the cavity is then given by $\tau_g \simeq \phi/(2\pi\delta)$ where ϕ is the phase of the modulation deduced from the lock-in detection. The small difference between τ_g and $\phi/(2\pi\delta)$ is due to nonidentical transmissions of the spectral components $\pm\delta$ corresponding to the modulation. This tiny dissymmetry, that can be neglected, is induced by the nonlinear response of our system.

Figures 2(a) and 2(b) show, respectively, the measured pump and modulation amplitude reflections from the nano-

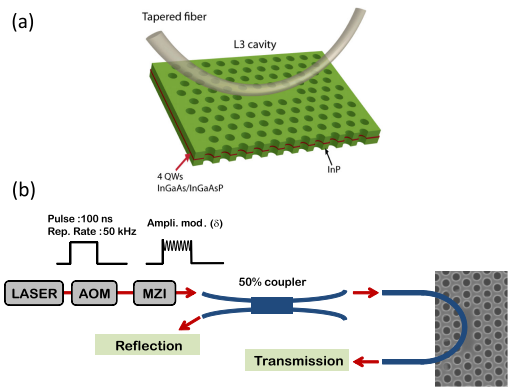

FIG. 1 (color online). (a) Three-dimensional (3D) representation of the $L3$ nanocavity with embedded QWs with a tapered fiber on top for optical coupling. (b) Scheme of the experimental setup, starting with the cw laser, the acousto-optic modulator (AOM) and the Mach-Zehnder interferometer (MZI) for the amplitude modulation at frequency δ. The pulses are coupled into the $L3$ cavity using a 50% coupler and optical tapered fiber. The reflected pulse by the $L3$ cavity is then detected and analyzed using a lock-in detection.

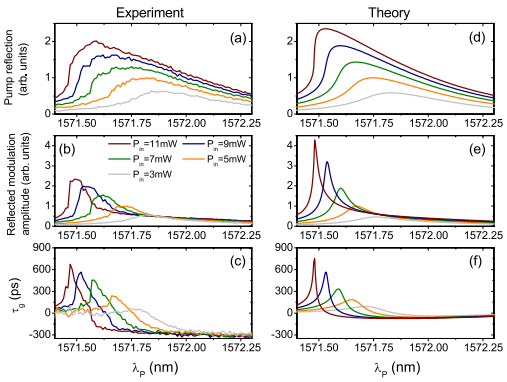

FIG. 2 (color online). Measured pump (a), modulation amplitude (b), reflections and group delay (c) for $\delta = 240$ MHz and for different pump intensities. (d), (e), and (f) are the corresponding theoretical predictions.

cavity as the laser wavelength is tuned around its resonance, for different laser powers. Figure 2(c) presents the corresponding group delay for $\delta = 240$ MHz. We observe that maximum delays are reached at the center of the modulation amplitude resonance (λ_M) whereas they are achieved on the steep slope of the pump resonance where a strong nonlinear behavior is clearly apparent. The maximum achieved delay is 685 ps for laser power of about 11 mW, corresponding to 55 μW pump power in the tapered fiber incident on the cavity and an optimal pump wavelength $\lambda_M \approx 1571.5$ nm. This constitutes a strong enhancement ($\times$ 110) of the group delay, with respect to the initial delay of the cavity, which is twice the cavity lifetime τ_l [30].

We furthermore show that the delay enhancement is closely related to an equivalent narrowing of the resonance linewidth. Figure 3 represents the measured modulation amplitude transfer function of the nanocavity. The measurement is achieved for a laser power of 10 mW, corresponding to 50 μW pump power. The pump wavelength is set near λ_M and the modulation frequency δ is tuned from 50 to 400 MHz. From a spectral point of view, this is similar to measure the probe beam reflection as the probe frequency is tuned relatively to the pump frequency $\nu_p = c/\lambda_p$. The resonance linewidth has a half width at half maximum (HWHM) of about 220 MHz. When considering the initial 25-GHz HWHM bandwidth of the cavity, this corresponds to a linewidth narrowing by a factor of 113, which is close to the enhancement observed for the group delay.

To explain the experimental results, a full theoretical analysis based on the coupled mode theory is carried out. It is based on the equations describing the time evolution of the mode amplitude a in the cavity and of the carrier density N in the QWs. They are given by [13,31,32]:

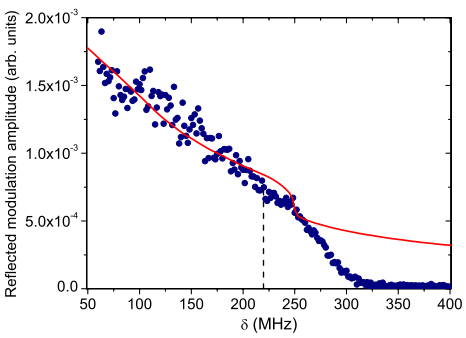

FIG. 3 (color online). Measured modulation amplitude reflection under nonlinear interaction for a pump wavelength near the optimal wavelength λ_M and a power of 10 mW (full circles). The vertical dashed line at $\delta = 220$ MHz indicates the HWHM. The corresponding theoretical prediction is represented by the continuous line. Note that the calculation has been carried out using an input power of 11.9 mW.

$$\frac{da}{dt} = \left[j\triangle - \frac{1}{2\tau_l} + \frac{1}{2\tau_{a0}}\frac{N}{N_t}(1 + j\alpha_H)\right]a + \frac{1}{\sqrt{\tau_e}}s_{\text{in}}$$
$$\frac{dN}{dt} = -\frac{N}{\tau_r} - \frac{1}{\tau_r}\frac{|a|^2}{|a_{\text{sat}}|^2}(N - N_t). \quad (2)$$

The resonance frequency of the cavity at transparency is given by ω_0. $\tau_{a0} = Q_{a0}/\omega_0$ is the intrinsic photon lifetime in the nanocavity limited by the absorption of the QWs. $\tau_l = Q_l/\omega_0$ is the overall photon lifetime without pumping and defined by $1/\tau_l = 2/\tau_e + 1/\tau_{\text{rad}} + 1/\tau_{a0}$, where τ_e is the fiber coupling photon lifetime and $\tau_{\text{rad}} = Q_{\text{rad}}/\omega_0$ the radiation photon lifetime. $\triangle = -\Delta\omega = \omega_0 - \alpha_H/(2\tau_{a0}) - \omega_p$, where ω_p is the circular frequency of the pump laser. N_t is the carrier density at transparency, α_H is the Henry factor, proportional to n_2, connecting the real to the imaginary parts of the nonlinear susceptibility of the QWs, and $|a_{\text{sat}}|^2$ the saturation energy. $s_{\text{in}}(t)$ is the input signal whereas the reflected signal is deduced from: $r_{\text{out}}(t) = 1/\sqrt{\tau_e}a(t)$. The solutions are derived by considering an intensity modulated excitation written as $s_{\text{in}}(t) = s_0 + s_1 \exp(j2\pi\delta t) + s_{-1}\exp(-j2\pi\delta t)$, with $s_1 = s_{-1} \ll s_0$. Neglecting the high order terms, the output amplitude can also be written as $r_{\text{out}}(t) = r_0 + r_1\exp(j2\pi\delta t) + r_{-1}\exp(-j2\pi\delta t)$. The output power P_{out} can thus be written: $P_{\text{out}}(t) = |r_{\text{out}}(t)|^2 = |r_0|^2 + R_s(\delta)\cos[2\pi\delta t - \phi(\delta)]$. From $P_{\text{out}}(t)$ we can deduce the reflected pump power $R_p = |r_0|^2$, the reflected modulation amplitude $R_s(\delta)$ and the group delay given by $\tau_g \simeq \phi(\delta)/(2\pi\delta)$.

The theoretical evolutions of R_p, $R_s(\delta)$, and $\tau_g(\delta)$ are then obtained using the following parameters: $\lambda_0 = 2\pi c/\omega_0 = 1570.21$ nm, $\alpha_H = 25$, $Q_{\text{rad}} = 6300$, and $Q_{a0} = 11\,200$. As already noticed, these values are either independently measured or inferred from experimental measurements. Note that we had to use $Q_l = 3000$ in order to reproduce the width of the pump resonance, this value is slightly different from that experimentally measured. This can be explained by the modification in the coupling conditions between the different experiments. In the numerical calculation, we consider $s_1 = s_0/80$ which gives a modulation depth of 10%. The only free parameter is the value of the saturation intracavity energy $|a_{\text{sat}}|^2$. The theoretical results are presented in Figs. 2(d)–2(f), also in Fig. 3, in regard to the experimental ones. The experimental behaviors, i.e., wavelength shifts, absolute positions, delay vs power and wavelength, are well reproduced. For the highest pump intensity there is a discrepancy on the reflected modulation amplitude and delay that is quite reasonable considering the limited number of adjustable parameters. This is due to limitations both on the measurement of the steep resonances and on the determination of the theoretical parameters close to the highly nonlinear points. For the long wavelengths, both experimental and theoretical curves show negative delays. Whereas theory predicts a negative delay of -80 ps, experimentally we measure

negative delays up to −300 ps, this result is not yet understood.

Due to the high value of the Henry factor, absorptive nonlinear effects can be neglected, whereas the cavity experiences a strong nonlinear phase shift. As the pump power is increased the blueshifted resonance undergoes a strong distortion characteristic to the onset of bistable behavior [33]. The stiff profile of the pump reflectivity and the phase shift, induce a steep reflectivity of the modulation amplitude and a strong dispersion as a precursor of the critical slowing down, which occurs above bistability. This gives the nonlinear dispersion contribution to the enhancement of the group delay.

Despite the good qualitative and quantitative theory-experiment agreement, it is hard to unambiguously identify from Eq. (2) the contribution of the CPO effect and of the nonlinear index dispersion, whereas in the Fabry-Perot model given by Eq. (1), they are clearly evidenced. However, the bare CPO regime can be reached in both approaches when intentionally considering a cavity with a poor Q-factor value. Figure 4 shows in red line the group delay normalized to $2\tau_l$, calculated using the Fabry-Perot model in the low Q limit. The term $\kappa n_2|A_p|^2$ in Eq. (1) is then neglected as the intracavity field and κ become weaker. The CPO group index is given by [5,7]: $n_g = \alpha_0 c\tau_r(P_p/P_{\rm sat})/2/(1+P_p/P_{\rm sat})^3$, assuming $\delta \ll 1/\tau_r$. The black squares represent the group delay obtained using the coupled mode theory model, Eq. (2), when considering a cavity with $Q_l = 100$. All the other parameters are those used for Fig. 2. The black squares perfectly superpose with the red line showing that the nonlinear dispersion can be neglected in the coupled mode theory for $Q_l = 100$, revealing, thus, the bare CPO-induced group delay, which contributes to about a factor 2.6 to the overall group delay enhancement. The dashed black and dotted red lines are the group delays of Fig. 2(f) at respectively the maximum transmission of the pump and of the modulation amplitude reflections, corresponding to our experimental situation. They are calculated up to $P_p/P_{\rm sat} \simeq 0.3$ as for higher values the system becomes bistable. They show that the behavior of the group delay when measured at the pump reflection maxima is dominated by the CPO effect in the delay enhancement at low pump powers. At the maxima of the modulation amplitude reflection, corresponding to the steep variation of the pump reflection, the delay is an intertwinement of the CPO effect and the strong nonlinear dispersion.

In contrast to usual approaches to achieve linewidth narrowing based on geometrical designs and technological performance, the one presented here is robust and not critical in terms of field detunings with respect to the cavity resonance. This is illustrated in Fig. 5 showing reflections of the modulation as a function of the pump-probe detuning δ. This is similar to Fig. 3 for four different pump frequencies. Note that the four curves have roughly the same shape and linewidths ranging from 140 to 240 MHz despite the large detunings of the pump frequencies. These four resonances are shown in the inset as a function of the frequency relative to a common origin $\nu_M = c/\lambda_M$. For guidance, the theoretical 50 GHz linewidth of the nanocavity ($Q_l = 3752$) is represented in dashed lines. This demonstrates that the final narrow resonance, appearing as a vertical line in the inset, is always achieved in the vicinity of the pump frequency, showing a frequency-pulling-like effect [34] that could be used to overcome technological imperfections.

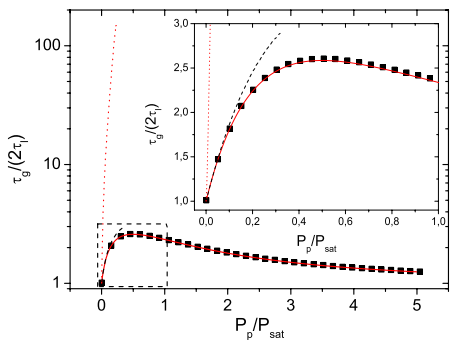

FIG. 4 (color online). Group delay τ_g in units of $(2\tau_l)$ as a function of the intracavity pump power normalized to the saturation power. Red solid line: τ_g obtained using Eq. (1) and neglecting the nonlinear contribution. Black squares: τ_g obtained using Eq. (2) with $Q_l = 100$. Dashed black line (dotted red line): τ_g of Fig. 2 at the maxima of the pump (modulation amplitude) reflections. Inset: zoom of the dashed box.

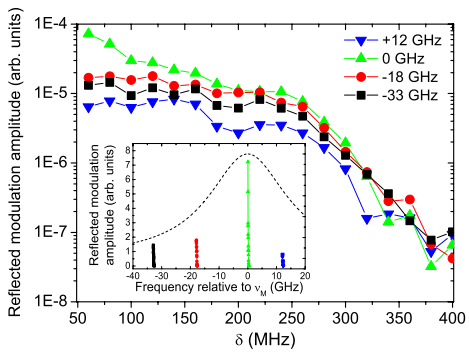

FIG. 5 (color online). Measured reflected modulation amplitude spectra for a pump power of 10 mW and for four different pump frequency ν_P detunings from the optimal frequency ν_M: (▼) 12 GHz, (▲) $\nu_P = \nu_M$, (•) −18 GHz, (■) −33 GHz. The inset shows in dashed lines the original nanocavity resonance obtained for $Q_l = 3752$ and centered at ν_M. The vertical lines are the few hundreds reflected modulation resonances.

Note finally that the whole set of experimental results is compatible with the hypothesis of an enhancement of the Q-factor of the nanocavity. For a Lorentzian resonance the cavity lifetime is simply given by $\tau_g/2$ [30] and the resonance linewidth directly linked to the Q-factor. In our case, although the resonance for the pump is highly asymmetric, the one for the signal is close to Lorentzian profile and both temporal and spectral measurements point to 2 orders of magnitude enhancement of the Q-factor. This is consistent with the predictions of Ref. [13].

In conclusion, we demonstrated that the spectral linewidth and the group delay of a nanocavity can be dynamically and strongly enhanced by the cooperative use of CPO and dispersive nonlinearities. A numerical model is developed to analyze the experimental results. Their agreement enables us to predict the frequency pulling of the nanocavity resonance to the pump field. This effect was experimentally demonstrated and can be used to lock the enhanced nanocavity to a desired wavelength. It can also be implemented to compensate for technological errors or to lock several nanocavities to the same wavelength. The theoretical model also predicts signal amplification, an issue of great importance to compensate or overcome absorptive, diffusive and unavoidable nanocavity coupling losses.

We acknowledge support by the French Agence Nationale de la Recherche through the project CALIN (ANR 2010 BLAN-1002). These results are within the scope of C'Nano IdF and RTRA Triangle de la Physique; C'Nano IdF is a CNRS, CEA, MESR, and Région Ile-de-France Nanosciences Competence Center. We thank Philippe Lalanne for helpful discussions.

[1] G. Müller, M. Müller, A. Wicht, R.-H. Rinkleff, and K. Danzmann, Phys. Rev. A **56**, 2385 (1997).
[2] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, M. O. Scully, and V. L. Velichansky, Opt. Lett. **23**, 295 (1998).
[3] M. Soljačić, E. Lidorikis, L. V. Hau, and J. D. Joannopoulos, Phys. Rev. E **71**, 026602 (2005).
[4] H. Wang, D. J. Goorskey, W. H. Burkett, and M. Xiao, Opt. Lett. **25**, 1732 (2000).
[5] M. S. Bigelow, N. N. Lepeshkin, and R. W. Boyd, Phys. Rev. Lett. **90**, 113903 (2003).
[6] M. S. Bigelow, N. N. Lepeshkin, and R. W. Boyd, Science **301**, 200 (2003).
[7] E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, J. A. Levenson, and V. Rouget, Phys. Rev. Lett. **95**, 143601 (2005).
[8] P. Wu and D. V. G. L. N. Rao, Phys. Rev. Lett. **95**, 253601 (2005).
[9] X. Zhao, P. Palinginis, B. Pesala, C. Chang-Hasnain, and P. Hemmer, Opt. Express **13**, 7899 (2005).
[10] N. Laurand, S. Calvez, M. D. Dawson, and A. E. Kelly, Opt. Express **14**, 6858 (2006).
[11] A. El Amili, B.-X. Miranda, F. Goldfarb, G. Baili, G. Beaudoin, I. Sagnes, F. Bretenaker, and M. Alouini, Phys. Rev. Lett. **105**, 223902 (2010).
[12] See Supplemental Material at http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.109.113903 for details on the CPO effect and on the experimental setup.
[13] Y. Dumeige, A. M. Yacomotti, P. Grinberg, K. Bencheikh, E. Le Cren, and J. A. Levenson, Phys. Rev. A **85**, 063824 (2012).
[14] Y. H. Lee, A. Chavez-Pirson, S. W. Koch, H. M. Gibbs, S. H. Park, J. Morhange, A. Jeffery, N. Peyghambarian, L. Banyai, A. C. Gossard, and W. Wiegmann, Phys. Rev. Lett. **57**, 2446 (1986).
[15] K. J. Vahala, Nature (London) **424**, 839 (2003).
[16] V. Ilchenko and A. Matsko, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **12**, 15 (2006).
[17] M. F. Yanik, S. Fan, and M. Soljačić, Appl. Phys. Lett. **83**, 2739 (2003).
[18] A. Shinya, S. Matsuo, Yosia, T. Tanabe, E. Kuramochi, T. Sato, T. Kakitsuka, and M. Notomi, Opt. Express **16**, 19382 (2008).
[19] Y. K. Chembo, D. V. Strekalov, and N. Yu, Phys. Rev. Lett. **104**, 103902 (2010).
[20] S. Arnold, D. Keng, S. I. Shopova, S. Holler, W. Zurawsky, and F. Vollmer, Opt. Express **17**, 6230 (2009).
[21] D. Strekalov, D. Aveline, N. Yu, R. Thompson, A. Matsko, and L. Maleki, J. Lightwave Technol. **21**, 3052 (2003).
[22] T. Tanabe, M. Notomi, E. Kuramochi, A. Shinya, and H. Taniyama, Nature Photon. **1**, 49 (2007).
[23] Q. Xu, P. Dong, and M. Lipson, Nature Phys. **3**, 406 (2007).
[24] Y. Dumeige, Europhys. Lett. **86**, 14003 (2009).
[25] T. Aoki, A. S. Parkins, D. J. Alton, C. A. Regal, B. Dayan, E. Ostby, K. J. Vahala, and H. J. Kimble, Phys. Rev. Lett. **102**, 083601 (2009).
[26] K. Rivoire, S. Buckley, A. Majumdar, H. Kim, P. Petroff, and J. Vuckovic, Appl. Phys. Lett. **98**, 083105 (2011).
[27] Y. Akahane, T. Asano, B. Song, and S. Noda, Nature (London) **425**, 944 (2003).
[28] M. Brunstein, R. Braive, R. Hostein, A. Beveratos, I. Rober-Philip, I. Sagnes, T. J. Karle, A. M. Yacomotti, J. A. Levenson, V. Moreau, G. Tessier, and Y. D. Wilde, Opt. Express **17**, 17118 (2009).
[29] V. Moreau, G. Tessier, F. Raineri, M. Brunstein, A. Yacomotti, R. Raj, I. Sagnes, A. Levenson, and Y. D. Wilde, Appl. Phys. Lett. **96**, 091103 (2010).
[30] Q. Li, T. Wang, Y. Su, M. Yan, and M. Qiu, Opt. Express **18**, 8367 (2010).
[31] H. A. Haus, *Waves and Fields in Optoelectronics* (Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ, 1984).
[32] E. Kapon, *Semiconductor laser I: Fundamentals* (Academic Press, New York, 1999).
[33] A. M. Yacomotti, F. Raineri, G. Vecchi, P. Monnier, R. Raj, A. Levenson, B. B. Bakir, C. Seassal, X. Letartre, P. Viktorovitch, L. D. Cioccio, and J. M. Fedeli, Appl. Phys. Lett. **88**, 231107 (2006).
[34] The frequency pulling effect is similar to that discussed in Ref. [2]. When a dispersive medium, with a large group index n_g, whose dispersion maximum is centered at a frequency ν_p is inserted in a cavity whose resonant is ν_0, the resonant frequency ν of the hybrid system is given by $\nu = (1/\eta)\nu_0 + (1 - 1/\eta)\nu_P$ where η is proportional to n_g. Thus, for a strongly dispersive medium the resonant frequency of the cavity is almost ν_p (which is the pump frequency in our system).

Continuous-Variable Triple-Photon States Quantum Entanglement

E.A. Rojas González, A. Borne, B. Boulanger, J.A. Levenson, and K. Bencheikh

Physical Review Letters **120**, 043601 (2018)

Continuous-Variable Triple-Photon States Quantum Entanglement

E. A. Rojas González,[1,2] A. Borne,[3,4] B. Boulanger,[4] J. A. Levenson,[1] and K. Bencheikh[1,*]
[1]*Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies CNRS/Université Paris-Saclay, 91460 Marcoussis, France*
[2]*Department of Engineering Sciences, The Ångström Laboratory, Uppsala University, SE-75121 Uppsala, Sweden*
[3]*Weizmann Institutes of Science, Rehovot 7610001, Israel*
[4]*Institut Néel, CNRS/Université Grenoble Alpes, 38402 Grenoble, France*

(Received 7 June 2017; revised manuscript received 17 October 2017; published 22 January 2018)

We investigate the quantum entanglement of the three modes associated with the three-photon states obtained by triple-photon generation in a phase-matched third-order nonlinear optical interaction. Although the second-order processes have been extensively dealt with, there is no direct analogy between the second and third-order mechanisms. We show, for example, the absence of quantum entanglement between the quadratures of the three modes in the case of spontaneous parametric triple-photon generation. However, we show robust, seeding-dependent, genuine triple-photon entanglement in the fully seeded case.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.120.043601

Introduction.—Twin-photon states have deeply influenced the history of quantum optics and are the main ingredient in several quantum protocols. Their ubiquity contrasts with the case of triple-photon states (TPS). The unique quantum properties of TPS were anticipated in the seminal paper on GHZ states [1]. Their tripartite entanglement is identified as a direct way to contradict local realism theory for nonstatistical predictions of quantum mechanics. Later on, W states have been predicted to retain maximally bipartite entanglement when any one of the three qubits is traced out [2]. Very recently, anisotropy was identified as a new invariant for pure three-qubit states and was found identical for each of their pairs, opening several promising applications [3]. More generally, one can expect that TPS plays in quantum optics a similar role as twin-photon states did over the last 40 years and allow the development of novel and efficient quantum protocols based on triple-photon entanglement or announced entangled twins. This is provided that clever optimization of both material and nonlinear interaction is achieved to overcome the weakness of third-order nonlinear processes. Until now, only configurations based on second-order nonlinear interactions have succeeded in producing TPS [4–8] at the expense of increased complexity, low efficiency, or detection conditioned protocols preventing their use. In the continuous variable (CV) domain, tripartie full inseparability was demonstrated by Aoki *et al.* in 2003 [9] using linear optics and squeezed states. Very recently, an important step was accomplished by Armstrong *et al.*, demonstrating CV TPS exhibiting genuine three-body entanglement [10]. However, the most direct way to produce TPS is in pure $\chi^{(3)}$ materials, in which a pump photon $\hbar\omega_p$ is down-converted simultaneously into a triplet $\hbar\omega_1$, $\hbar\omega_2$, and $\hbar\omega_3$ with the subsequent energy conservation, $\hbar\omega_p = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3$, and momentum conservation $\hbar\vec{k}_p = \hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2 + \hbar\vec{k}_3$. In the degenerate configuration, $\chi^{(3)}$-based TPS exhibit negativities in the Wigner function [11], signature of non-Gaussian statistics, constituting a real asset over TPS obtained by cascaded $\chi^{(2)}$ interactions and linear optics. Only one experimental demonstration of triple-photon generation (TPG) was reported in the regime of bistate seeding; i.e., two of the three fields associated with the outcoming component of the triple-photons are injected together with the pump field [12]. This pioneering work clearly demonstrates a phase-matched third-order nonlinear process. Its transposition to spontaneous down-conversion is, however, precluded by the small $\chi^{(3)}$ value. For instance, in the fluorescence regime, less than 0.01 triplet per day is expected [11]. There is an active research for novel materials and geometrical configurations pushing nowadays the efficiency of the reverse nonlinear process, namely third-harmonic generation, from bulk to waveguide operation [13–16]. One can reasonably conjecture this will contribute to increased TPG efficiency as predicted by semiclassical theories [17–19]. However, one can wonder if our comprehension at the quantum level of the process is sufficient to optimize the interaction. Until now, this optimization is strongly driven by the analogy with the well-known and largely investigated $\chi^{(2)}$ process.

In this Letter, we develop a full quantum description of TPS in the CV domain. To the best of our knowledge, the CV quantum properties [20] remain unexplored for TPS generated by a pure third-order nonlinear interaction. We discuss spontaneous, single, double, and triple-seeded configurations and demonstrate that using twin-photon knowledge is often a wrong strategy for TPS optimization. As a result, no entanglement is found in the spontaneous emission regime. More importantly, tripartite entanglement is predicted in the triple seeding configuration and is found strongly increasing with the seeding, becoming a novel avenue for TPS optimization.

 © 2018 American Physical Society

The starting point of our theoretical analysis is the interaction Hamiltonian describing TPG in a $\chi^{(3)}$ material [21]. It reduces to

$$\hat{H} = \hbar\kappa(\hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2^\dagger\hat{a}_3^\dagger + \hat{a}_1\hat{a}_2\hat{a}_3), \tag{1}$$

for a monochromatic strong undepleted classical pump. κ is proportional to the pump amplitude and to the nonlinear susceptibility $\chi^{(3)}$. The annihilation operators $\hat{a}_k$ ($k = 1, 2, 3$) describe the triple photons modes. We now consider the evolution of the operators in the Heisenberg picture

$$\frac{d\hat{a}_k(t)}{dt} = \frac{\imath}{\hbar}[\hat{H}, \hat{a}_k(t)]. \tag{2}$$

Let $\hat{A}_k$ ($\hat{A}_k^\dagger$) be the annihilation (creation) operators of mode k after the nonlinear interaction. We define the amplitude and phase quadratures $\hat{p}_k = \hat{A}_k + \hat{A}_k^\dagger$ and $\hat{q}_k = \imath(\hat{A}_k - \hat{A}_k^\dagger)$, satisfying the canonical commutation relations $[\hat{q}_k, \hat{p}_k] = 2\imath$. Their quantum fluctuations are measured with balanced homodyne detections. By sweeping the phase θ_k of the local oscillator, one has access to the generalized quadratures $\hat{P}_k(\theta_k) = e^{-\imath\theta_k}\hat{A}_k^\dagger + e^{\imath\theta_k}\hat{A}_k$ and $\hat{Q}_k(\theta_k) = \hat{P}_k(\theta_k + \pi/2)$. Let us finally define the following linear combinations:

$$\begin{aligned}\hat{u} &= h_1\hat{P}_1 + h_2\hat{P}_2 + h_3\hat{P}_3,\\ \hat{v} &= g_1\hat{Q}_1 + g_2\hat{Q}_2 + g_3\hat{Q}_3,\end{aligned} \tag{3}$$

where h_k and g_k are arbitrary real parameters introduced experimentally as attenuations or amplifications of the photocurrents generated by the balanced homodyne detections. Phase dependence is intentionally omitted in Eq. (3) for simplicity. We quantify multibody quantum entanglement of TPS using the nonseparability criterion S introduced by van Loock and Furusawa in Ref. [22], defined as

$$S = \langle\Delta\hat{u}^2\rangle + \langle\Delta\hat{v}^2\rangle, \tag{4}$$

which can be measured experimentally using homodyne detection. Expanding Eq. (4) and using Eq. (3) we find

$$\begin{aligned}S = &\sum_{k=1}^{3} h_k^2\langle\Delta\hat{Q}_k^2\rangle + \sum_{k=1}^{3} g_k^2\langle\Delta\hat{P}_k^2\rangle,\\ &+ \sum_{k=1}^{3}\sum_{\substack{m=1\\ m\neq k}}^{3} h_k h_m(\langle\hat{Q}_k\hat{Q}_m\rangle - \langle\hat{Q}_k\rangle\langle\hat{Q}_m\rangle),\\ &+ \sum_{k=1}^{3}\sum_{\substack{m=1\\ m\neq k}}^{3} g_k g_m(\langle\hat{P}_k\hat{P}_m\rangle - \langle\hat{P}_k\rangle\langle\hat{P}_m\rangle).\end{aligned} \tag{5}$$

The two first terms are the sum of the quadrature variances. The two last describe cross correlations between the output modes at the origin of the entanglement. Indeed, whereas the two first terms are always positive, the two last can be negative and can interfere destructively with the first ones. The criterion S is a function of h_k and g_k. If

$$S < f_p = 2(|h_k g_k| + |h_l g_l + h_m g_m|) \tag{6}$$

for a given permutation $\{k, l, m\}$ of $\{1, 2, 3\}$, then the quantum system is said to be fully inseparable [22]. The system is at least partially separable if $f_p \leq S < f_s = 2(|h_k g_k| + |h_l g_l| + |h_m g_m|)$. According to [22], the parameters h_k and g_k are chosen such that $[\hat{u}, \hat{v}] = 0$, to allow $S \to 0$ and the existence of simultaneous eigenstates of $\hat{u}$ and $\hat{v}$. As pointed out by Teh and Reid [23], one has to distinguish between full inseparability and genuine entanglement. They both are equivalent only for pure quantum states, otherwise, for mixed states, full inseparability is not a sufficient condition to claim entanglement. One has instead to fulfill

$$\begin{aligned}S < 2\ \min\{&|h_1 g_1| + |h_2 g_2 + h_3 g_3|,\\ &|h_2 g_2| + |h_1 g_1 + h_3 g_3|, |h_3 g_3| + |h_1 g_1 + h_2 g_2|\},\end{aligned} \tag{7}$$

to confirm genuine entanglement—condition (18) in [23]—which is more stringent than criterion (6). In the subsequent analysis, the boundaries in (6) and (7) are, respectively, 4 and 2 for our chosen $\hat{u}$ and $\hat{v}$ quadratures (and hence h_k and g_k) in the case of doubly or fully seeded TPG. We can thus claim genuine entanglement when $S < 2$ or at least full inseparability when $S < 4$.

The determination of S for TPS relies on the resolution of Eq. (2). Unfortunately, no analytical solutions are known in the frame of quantum mechanics, though their exact classical solutions are Jacobi elliptic functions [24]. Here, to obtain an approximate solution of the operators at a time t, we use the Baker-Hausdorff expansion

$$\hat{A}_k = \hat{a}_k + \sum_{n=1}^{\infty}\frac{(\imath\xi)^n}{n!}\hat{\Omega}_{n;klm}, \tag{8}$$

to a finite order, $\xi = \kappa t$ being the interaction strength and

$$\hat{\Omega}_{n;klm} = \frac{1}{(\hbar\kappa)^n}[\underbrace{\hat{H}, [\hat{H}, [\cdots\hat{H}, [\hat{H}}_{n\text{-times}}, \hat{a}_k]]]], \tag{9}$$

with $\{k, l, m\}$ being permutations of $\{1, 2, 3\}$. The expansion order of the operators in Eq. (8) is crucial for the validity of our analysis. It depends on the interaction strength ξ and on the average photon number of the seeding. In the following, we will analyze different situations of TPG expanding Eq. (8) to a finite order and calculate the criterion S using a combination of both symbolic and numerical computational methods. For all numerical analysis we take $|\xi| = 1.75 \times 10^{-6}$, deduced

from [24], which is very representative of the third-order nonlinearity of nowadays materials.

Triple-photon parametric fluorescence.—In the fluorescence case, there is no seeding and since $|\xi| \ll 1$, the expansion is valid at any order. It is well known that spontaneous parametric down-conversion (SPDC) induces strong quantum entanglement between the twin modes. Surprisingly, our analysis shows that spontaneous TPG does not exhibit such quantum entanglement in the CV regime for any chosen quadratures $\hat{u}$ and $\hat{v}$. The cross correlation terms in Eq. (5) between the output modes vanish and S reduces to

$$S = (1 + 2\langle \hat{A}^\dagger \hat{A} \rangle) \sum_{k=1}^{3} (h_k^2 + g_k^2), \tag{10}$$

when assuming identical average photon number $\langle \hat{A}^\dagger \hat{A} \rangle$ in each mode. The full derivation of Eq. (10) is given in the Supplemental Material [25]. According to Eq. (10), the criterion S only depends on h_k, g_k and on ξ, which is contained in $\langle \hat{A}^\dagger \hat{A} \rangle$. We compare the result given by Eq. (10) to the classical limit f_s by analyzing the difference $S - f_s$. After some mathematical manipulations, we end up with $S - f_s = 2\Gamma^2 \langle \hat{A}^\dagger \hat{A} \rangle + \sum_{k=1}^{3} (|h_k| - |g_k|)^2$, where $\Gamma^2 = (h_1^2 + h_2^2 + h_3^2 + g_1^2 + g_2^2 + g_3^2)$. Each term being positive, $S \geq f_s$ for any choice of h_k and g_k. This result clearly demonstrates that, in contrast to SPDC, the three modes are fully independent, meaning that their quantum fluctuations are totally uncorrelated. This result could be easily understood as follows. The triplets are generated from the vacuum quantum fluctuations as the twins. However, for a given eigenvalue outcome of the observable, $\hat{Q}_1$ for example, the two others, $\hat{Q}_2$ and $\hat{Q}_3$, can still take any random pair of eigenvalues. Each realization is thus independent from the previous one.

Partially seeded triple-photon generation.—The validity of our analysis in the seeded cases is discussed in detail in the Supplemental Material [25]. We show that a sufficient condition for the expansion to be valid is $|\xi\alpha| \ll 1$, where $\bar{N}_{\text{in}} = |\alpha|^2$ is the incident average photon number per mode. All subsequent numerical analyses are done using $\bar{N}_{\text{in}} \leq 10^{11}$ and a fifth-order expansion of the operators $\hat{A}_k$. The associated errors on the operators is about 6.4% and even smaller on the estimation of the gains, variances, and S.

When only one of the three modes is excited by a bright coherent state $|\alpha\rangle$ containing $\bar{N}_{\text{in}}$ photons on average, no three-body quantum entanglement was found. If, for example, mode 3 is seeded, we can replace the operator $\hat{a}_3$ by its classical field amplitude counterpart $\imath E_3$, chosen to be complex for convenience, assuming that E_3 is a real number. The Hamiltonian becomes $\hat{H}^{(2)} = \imath\hbar\kappa(\hat{a}_1\hat{a}_2 - \hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2^\dagger)$, where $\kappa = gE_3$. It describes SPDC, where a pump photon is converted into twin photons. In the third-order configuration, however, the down-conversion process is proportional to the effective second-order susceptibility $\chi^{(3)}E_3$, meaning that the efficiency depends on the seeding level.

Figure 1 allows us to analyze the bipartite nonseparability criterion S for these twins. The magenta continuous line with the (plus) markers shows S for modes 1 and 2, using the quadratures $\hat{u} = \hat{Q}_1 + \hat{Q}_2$ and $\hat{v} = \hat{P}_1 - \hat{P}_2$, as a function of the seeding average photon number in mode 3. The quadratures are determined from the exact solutions of Eq. (2) using $\hat{H}^{(2)}$. S starts at 4, which is the classical limit, i.e. the sum of the four quadrature variances, then decreases as the seeding gets stronger. The gray area beneath $S = 2$ indicates the quantum region, meaning that the measurement of the quadrature $\hat{Q}_2$ (respectively, $\hat{P}_2$) allows us to know $\hat{Q}_1$ (respectively, $\hat{P}_1$) better than the standard quantum limit, the shot noise of a coherent state [26]. Figure 1 shows that the entanglement gets stronger as the seeding increases. In a sense, the single mode seeded TPG is a reconfigurable two-body entanglement source where the seeded mode acts as a control parameter: it changes the strength of the interaction and selects which quadratures are entangled depending on the seeding phase. When $E_3 \to 0$, it reaches the fluorescence case, which can be seen as an effective second-order process driven by the quantum fluctuations of mode 3. This reasoning helps us to understand the origin of the missing three-body quantum

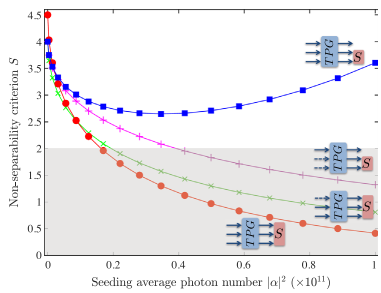

FIG. 1. Evolution of the nonseparability criterion S as a function of the seeding average photon number for $|\xi| = 1.75 \times 10^{-6}$ and for different injection cases. The gray area highlights the quantum region of tripartite genuine entanglement. Full inseparability is fulfilled between 2 and 4. The triple-photon generation boxes show the different schemes with the seeded (full arrows) and nonseeded (dashed arrows) modes. The S boxes indicate the modes concerned by the S measurement. Magenta line with (plus) markers: single seeding case. Green line with (times) markers: double seeding case. Red line with (circle) markers for the fully seeded at $\theta_1 = 0$, $\theta_2 = \theta_3 = \pi$, and for $\beta = \sqrt{2}$. The phase of the seeding coherent state is $\phi = \pi/2$. Blue line with (square) markers: same as the red curve but for quadratures $\hat{u} = \hat{Q}_1 + \hat{Q}_2$ and $\hat{v} = \hat{P}_1 - \hat{P}_2$.

entanglement. Indeed, each eigenvalue resulting from the measurement of the seeding mode, even at shot noise, will reset the twin-photon generation process.

The case of two modes seeded TPG, corresponding to the arrangement described in [24], is analyzed hereafter. The input state of the system is $|\psi\rangle = |0_1, \alpha_2, \alpha_3\rangle$. The most trivial combinations to be considered in Eq. (3) are for $h_1 = g_1 = 1$, $h_2 = h_3 = 1/\sqrt{2}$, and $g_2 = g_3 = -1/\sqrt{2}$. All the local oscillator phases are $\theta_k = 0$. Any other phase does not influence the result except by shifting the minimum value of S in the phase space. The chosen parameters suggest that the noninjected mode 1 is investigated through the measurement of both seeded modes 2 and 3. The green line with (times) markers in Fig. 1 represents the corresponding S. Starting at 4, it decreases as the seeding grows, violating condition (6) and showing that the three modes are fully inseparable. At $\bar{N}_{\rm in} \simeq 2 \times 10^{10}$, S goes below 2, indicating genuine tripartite entanglement according to Eq. (7). In this regime, measuring both modes 2 and 3 is necessary to know mode 1 better than the standard quantum limit.

Fully seeded triple-photon generation.—This section focuses on the case where the three modes are initially excited. The input state of the system is $|\psi\rangle = |\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3\rangle$. As for the fully seeded second-order parametric interaction, it is necessary to consider the phase of the different modes at the input relative to the pump phase. We consider identical coherent states seeding the three modes, so that $\alpha_k = |\alpha| e^{\imath\phi}$ for each mode.

We start by looking at the evolution of the gain $G = \bar{N}_{\rm out}/\bar{N}_{\rm in}$, where $\bar{N}_{\rm out} = \langle \hat{A}_k^\dagger \hat{A}_k \rangle$ and $\bar{N}_{\rm in} = \langle \hat{a}_k^\dagger \hat{a}_k \rangle$ are the output and input average photon number in each mode. We also calculate the variance of the quadratures $\hat{P}_k$ and $\hat{Q}_k$. Figure 2(a) represents the gain G for $\bar{N}_{\rm in} = 4 \times 10^{10}$ in polar coordinates as a function of the phase ϕ of the seeding. It shows amplification ($G > 1$) and deamplification ($G < 1$) regimes and features three lobs subsequent to the $e^{\imath 3\phi}$ dependance of $\bar{N}_{\rm out}$. The maxima are located at $\phi = \pi/2$, $7\pi/6$ and $11\pi/6$ corresponding to the phases for

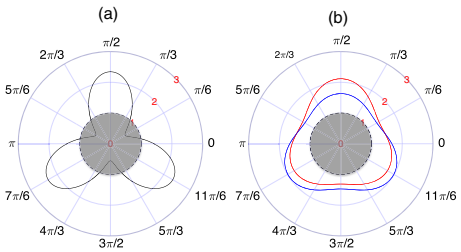

FIG. 2. Gain (a) and $\hat{P}_k$ (red) and $\hat{Q}_k$ (blue) variances (b) as a function of the phase of the seeding fields, for $|\xi| = 1.75 \times 10^{-6}$ and $\bar{N}_{\rm in} = 4 \times 10^{10}$. The gray circles indicate the unity gain in (a) and the standard quantum limit in (b).

which the down-conversion TPG process $\omega_p \to \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ is enhanced. The minima are obtained for $\phi = \pi/6$, $5\pi/6$ and $3\pi/2$. Here, it is the sum frequency process $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \to \omega_p$ which predominates. Figure 2(b) shows the variances of the quadratures $\hat{P}_k$ (red) and $\hat{Q}_k$ (blue) in the same conditions of Fig. 2(a). The most interesting feature, besides the presence of the three lobes, is that the variances are always above the shot noise (gray circle) when the modes are measured separately. This behavior is equivalent to nondegenerate twin-photon generation where signal and idler modes exhibit super-Poissonian fluctuations, when taken separately, and Einstein-Podolsky-Rosen entanglement when combined [26].

Looking for tripartite quantum entanglement, we consider the following particular linear combinations of the operators of Eq. (3):

$$\hat{u} = \hat{Q}_1 + \frac{1}{\beta\sqrt{2}}(\hat{Q}_2 + \hat{Q}_3),$$
$$\hat{v} = \hat{P}_1 - \beta\frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{P}_2 + \hat{P}_3). \tag{11}$$

The extra parameter β allows further optimization. Our analysis shows that for each phase θ_1 of the local oscillator used for detecting mode 1, there exists a couple of phases θ_2 and θ_3 for modes 2 and 3 that minimize S. The red line with (circle) markers in Fig. 1 shows the evolution of S as a function of $\bar{N}_{\rm in}$. It is obtained in the amplification regime and for $\theta_1 = 0$ and $\theta_2 = \theta_3 = \pi$. As the seeding increases, the red curve goes rapidly below 4, satisfying the full inseparability condition and then goes below 2 at $\bar{N}_{\rm in} \simeq 1.8 \times 10^{10}$, showing genuine three-body quantum entanglement. This means that a measurement of both modes 2 and 3 is necessary to gain information on mode 1 better than the shot noise limit. Indeed, if one tries to determine mode 1 using only mode 2, for example, through the quadratures $\hat{u} = \hat{Q}_1 + \hat{Q}_2$ and $\hat{v} = \hat{P}_1 - \hat{P}_2$, then $S > 2$, as shown by the blue line with (square) markers in Fig. 1.

The feasibility and the likelihood of reaching the quantum level is an important aspect. The parameters considered in these calculations are compatible with existing experimental results at the classical level for bulk materials of [24], from which the interaction strength $|\xi| = 1.75 \times 10^{-6}$ is deduced. Moreover, the seeding average photon number in our calculations is 2 orders of magnitude smaller than in [24]. Concerning the crucial issue of losses, which degrade the quantum correlations, they are discussed in the Supplemental Material [25]. They are modeled by beam splitters with a transmission coefficient $T = \eta$ in front of ideal detection systems, where η is the overall quantum efficiency per mode. We show for the fully seeded TPG, genuine tripartite entanglement preservation up to 38% losses per mode. Such robustness against losses is due to the excess noise of the three modes as depicted in Fig. 2(b).

Conclusion.—In our analysis of parametric TPG, some counterintuitive results are found when comparing with the well-known twin-photon second-order equivalent. The first counterintuitive result is obtained for the pure spontaneous case for which we demonstrate the lack of tripartite quantum entanglement. The more important finding is for the fully seeded TPG. It exhibits a phase-dependent gain, behaving similarly to the well-known second-order phase-sensitive parametric amplifier. But it also appears as an efficient way to generate genuine tripartite CV quantum entanglement. An additional property corresponds to the increase in efficiency with the amplitude of the seeding. Finally, our pure triple-photon generation approach for generating TPS is done in a traveling wave configuration which is very practical for subsequent quantum information protocols. Moreover, it is more robust against losses than the $\chi^{(2)}$-based TPS. Indeed, instead of using squeezed beams, we deal with super-Poissonian states known to be very insensitive to optical losses. In conclusion, this three-body genuine quantum entanglement based on a true triple-photon generation constitutes a real asset for a new generation quantum cryptography and other quantum information protocols based on multipartite entanglement.

This work is supported by the French Agence Nationale de la Recherche through the project TRIQUI (ANR-17-CE24-0041-03).

*kamel.bencheikh@c2n.upsaclay.fr

[1] D. M. Greenberger, M. A. Horne, A. Shimony, and A. Zeilinger, Am. J. Phys. **58**, 1131 (1990).
[2] W. Dür, G. Vidal, and J. I. Cirac, Phys. Rev. A **62**, 062314 (2000).
[3] S. Cheng and M. J. W. Hall, Phys. Rev. Lett. **118**, 010401 (2017).
[4] D. Bouwmeester, J.-W. Pan, M. Daniell, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, Phys. Rev. Lett. **82**, 1345 (1999).
[5] A. S. Coelho, F. A. S. Barbosa, K. N. Cassemiro, A. S. Villar, M. Martinelli, and P. Nussenzveig, Science **326**, 823 (2009).
[6] H. Hübel, D. R. Hamel, A. Fedrizzi, S. Ramelow, K. J. Resch, and T. Jennewein, Nature (London) **466**, 601 (2010).
[7] L. K. Shalm, D. R. Hamel, Z. Yan, C. Simon, K. J. Resch, and T. Jennewein, Nat. Phys. **9**, 19 (2013).
[8] D. R. Hamel, L. K. Shalm, H. Hübel, A. J. Miller, F. Marsili, V. B. Verma, R. P. Mirin, S. W. Nam, K. J. Resch, and T. Jennewein, Nat. Photonics **8**, 801 (2014).
[9] T. Aoki, N. Takei, H. Yonezawa, K. Wakui, T. Hiraoka, A. Furusawa, and P. van Loock, Phys. Rev. Lett. **91**, 080404 (2003).
[10] S. Armstrong, M. Wang, R. Y. Teh, Q. Gong, Q. He, J. Janousek, H.-A. Bachor, M. D. Reid, and P. K. Lam, Nat. Phys. **11**, 167 (2015).
[11] K. Bencheikh, F. Gravier, J. Douady, J. A. Levenson, and B. Boulanger, C.R. Phys. **8**, 206 (2007).
[12] J. Douady and B. Boulanger, Opt. Lett. **29**, 2794 (2004).
[13] A. Efimov, A. J. Taylor, F. G. Omenetto, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, and P. S. J. Russell, Opt. Express **11**, 2567 (2003).
[14] K. Bencheikh, S. Richard, G. Mélin, G. Krabshuis, F. Gooijer, and J. A. Levenson, Opt. Lett. **37**, 289 (2012).
[15] A. Cavanna, F. Just, X. Jiang, G. Leuchs, M. V. Chekhova, P. S. Russell, and N. Y. Joly, Optica **3**, 952 (2016).
[16] S. C. Warren-Smith, J. Wie, M. Chemnitz, R. Kostecki, H. Ebendorff-Heidepriem, T. M. Monro, and M. A. Schmidt, Opt. Express **24**, 17860 (2016).
[17] S. Richard, K. Bencheikh, B. Boulanger, and J. A. Levenson, Opt. Lett. **36**, 3000 (2011).
[18] M. Corona, K. Garay-Palmett, and A. B. U'ren, Opt. Lett. **36**, 190 (2011).
[19] M. Corona, K. Garay-Palmett, and A. B. U'Ren, Phys. Rev. A **84**, 033823 (2011).
[20] S. L. Braunstein and A. K. Pati, *Quantum Information with Continuous Variables* (Springer Science & Business Media, New York, 2012).
[21] A. Dot, A. Borne, B. Boulanger, K. Bencheikh, and J. A. Levenson, Phys. Rev. A **85**, 023809 (2012).
[22] P. van Loock and A. Furusawa, Phys. Rev. A **67**, 052315 (2003).
[23] R. Y. Teh and M. D. Reid, Phys. Rev. A **90**, 062337 (2014).
[24] F. Gravier and B. Boulanger, J. Opt. Soc. Am. B **25**, 98 (2008).
[25] See Supplemental Material at http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.120.043601 for details on the calculation of the nonseparability criterion S in the case of spontaneous triple-photon generation, details on the validity of the operators expansion, and optical losses simulation.
[26] Z. Y. Ou, S. F. Pereira, H. J. Kimble, and K. C. Peng, Phys. Rev. Lett. **68**, 3663 (1992).

Photonic crystal nanobeam nanocavities with optical resonances around 800 nm

I. Saber, R. Boddeda, F. Raineri, D. Sanchez, G. Beaudoin, I. Sagnes, Q. Glorieux, A. Bramati, J.A. Levenson, and K. Bencheikh

Journal of the Optical Society of America B **36**, 1823 (2019)

Research Article Vol. 36, No. 7 / July 2019 / Journal of the Optical Society of America B 1823

Journal of the Optical Society of America B

OPTICAL PHYSICS

Photonic crystal nanobeam cavities with optical resonances around 800 nm

I. Saber,[1] R. Boddeda,[2] F. Raineri,[1,3] D. Sanchez,[1] G. Beaudoin,[1] I. Sagnes,[1] Q. Glorieux,[2] A. Bramati,[2] J. A. Levenson,[1] and K. Bencheikh[1,*]

[1]Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies CNRS/Université Paris-Saclay, 91120 Palaiseau, France
[2]Laboratoire Kastler Brossel, Sorbonne Université, CNRS, ENS-PSL Research University, Collège de France, 4 place Jussieu, 75252 Paris, France
[3]Université Paris Diderot, Sorbonne Paris Cité, 75013 Paris, France
*Corresponding author: kamel.bencheikh@c2n.upsaclay.fr

Received 26 March 2019; accepted 21 May 2019; posted 22 May 2019 (Doc. ID 361987); published 13 June 2019

We report on the design and the fabrication of 1D photonic crystal nanobeam cavities with optical resonances around 800 nm, compatible with rubidium, cesium, or argon atomic transitions. The cavities are made of indium gallium phosphide material, a III-V semi-conductor compound which has a large index of refraction ($n \simeq 3.3$) favoring strong optical confinement and small mode volumes. Nanobeam cavities with inline and side coupling have been designed and fabricated, and quality factors up to 2×10^4 have been measured. © 2019 Optical Society of America

https://doi.org/10.1364/JOSAB.36.001823

1. INTRODUCTION

Cavity quantum electrodynamics (CQED) is based on the strong interaction between single atoms and photons [1,2]. The ability to reach this regime mostly relies on the possibility of confining the electromagnetic field in optical resonators with long-lived photons. Over the last years, impressive results have been achieved in terms of the figure of merit Q/V, by reducing the cavity dimensions and by improving the reflectivity of the constitutive mirrors. To obtain high-Q factors with small mode volumes is one of the primary assets of photonic crystal (PhC) cavities. However, due to both technological and application reasons, PhCs are mostly developed at telecom wavelengths. Shorter wavelengths, suitable, for example, for strong coupling with cold atoms, are by far much more challenging in terms of technological accuracy [3].

Photonic crystal cavities are generally obtained by creating an optical defect in a structure with a periodic change in the refractive index distribution [4–6]. When the optical frequency of the electromagnetic field is in the bandgap of the PhC, light is trapped in the defect region [7,8]. Various cavities based on this principle have been designed and fabricated. Popular designs are based on 2D PhC, where one or several holes are removed from the otherwise periodic lattice [9–11], or 2D PhC waveguides, where a full row of holes in the periodic lattice is removed [12–14]. In the latter, the cavity is obtained by engineering the period, largest in its center and decreasing when moving away. The propagating mode of the waveguide at the center becomes evanescent at the edges and is thus confined, forming a resonant mode. Cavities are also obtained in 1D PhC, usually made in a ridge waveguide in which two series of air-holes are etched [15–19]. The two series are usually separated by a distance L forming the cavity, where light is trapped. Such cavities, usually referred to as nanobeam cavities, benefit from the smallest mode volume and are thus of primary interest for CQED.

In this paper, we report on the design and fabrication of high-Q PhC cavities with small mode volumes with optical resonances in the low-infrared region (~800 nm), which make them ideal to interact with alkali atoms, such as rubidium and cesium and with argon atoms. Our design is based on a typical 1D PhC cavity. However, for a PhC with a fixed period, the achievable Q factors are quite limited. Indeed, the theory based on Fourier space analysis shows that the Q factors of the PhC cavities are limited by the out-of-plane scattering [20,21]. To minimize the scattered power, one needs to attenuate the Fourier components in k space within the light cone. This is obtained when the mode field has a Gaussian profile in real space [10,22,23]. In practice, such a mode profile can be achieved by engineering the PhC [18,24] throughout the modification of one or several of its parameters, namely the period, the hole radius, the width, or the thickness. In our design, we modulate only the PhC period along the propagation direction [24]. In order to reduce the cavity mode volume while minimizing the losses, our nanobeam cavities are designed in such a way that their length L is a single period of the PhC, as demonstrated by Quan *et. al.* in [17]. The coupling into the nanocavity is an important issue to take into consideration when developing high-Q cavities. Indeed, as the unavoidable coupling opens an extra lossy channel, it will strongly influence

the measured cavity Q factor. The coupling will also set the transmission amplitude to and from the cavity. The most trivial coupling way is the inline coupling, where the ridge waveguide in which the nanobeam cavity is made also serves as the input and output channels. Recently, it has been shown that in such a design the transmission of the fundamental mode is rather low [25]. This has been confirmed by our measurements and it is due to the wave vector mismatch between the resonant mode in the cavity and the propagating mode in the waveguide. In order to circumvent this transmission problem, we have also designed nanobeam cavities with side coupling. Ridge waveguides in the vicinity and on both sides of the nanobeam cavities are fabricated to couple in the light from a conventional laser source and to couple out the light from the cavities. To launch or extract light into the coupling waveguides, Bragg gratings are fabricated at their extremities as they are routinely used at telecom wavelengths [26]. When properly designed, they could show extremely high coupling efficiencies [27,28]. However, in this paper, we paid little attention to their design, focusing all our efforts on the development of the nanobeam cavities.

In the next section, we will first describe in detail the design to improve the Q factors of 1D PhC nanobeam cavities and present their fabrication process. The optical characterizations will be described in the last section, before the conclusion.

2. DESIGN AND FABRICATION

In order to achieve nanobeam cavities with optical resonances close to 800 nm and small modal volumes, one needs to use a high-index compound transparent in the near-infrared band. We have chosen indium gallium phosphide (InGaP) because of its high index of refraction, $n = 3.32$ at 800 nm, and its electronic bandgap of 1.85 eV, which makes it transparent for wavelengths higher than 674 nm. The InGaP nanobeam is 150 nm thick, about $\lambda/(2n)$, ensuring single-mode operation, and 300 nm wide. The 1D PhC is obtained by etching 120-nm-diameter circular air-holes in the InGaP. For the Q factor optimization, the periods of the PhC were varied from 180 nm at the center to 215 nm at the edge of the nanobeam cavity, according to an algorithm that allows the mode to have a Gaussian shape, following the apodization technique described in [22,24]. The algorithm gives the period as a function of the position in the PhC mirror. The out-of-plane losses are thus reduced by minimizing the scattered power given by the integral of the spatial Fourier components of the field within the light cone. Following the analysis in [24], the first period is chosen in such a way that the target resonance frequency ($f_0 = 375$ THz, $\lambda_0 = 800$ nm) of the cavity coincides with the cutoff frequency of the dielectric mode of the PhC at $k = 0.5\ (2\pi/a)$. The field has an evanescent attenuation in the bandgap of the 1D PhC crystal, with an envelope decaying as e^{-qx} where q is the imaginary part of the wave vector.

At the cutoff frequency, attenuation constant q is 0. Figure 1(a) shows the band diagram for 1D PhC with a period $a = 180$ nm. The red line indicates the target resonance frequency f_0 and the gray regions are the dielectric (bottom) and air (top) bands of the PhC. The strongest value of q is obtained for a PhC with a period $a = 215$ nm, where f_0 lies in the middle of the bandgap, as shown in Fig. 1(b). In order to have a field with a Gaussian profile, the attenuation q needs to be varied linearly along the x direction of the PhC, $q = Bx$, so that the exponential decay e^{-qx} becomes a Gaussian attenuation e^{-Bx^2}. Our algorithm allows determination of the evolution of the periods of the PhC from 180 to 215 nm along the x direction to obtain a Gaussian field variation for a given full width at half-maxima of the optical mode field, which depends on B, the only free parameter. The continuous red line in Fig. 2 shows the evolution of the period as a function of the position in the PhC mirror surrounding the cavity when the FWHM of the mode is chosen to be 1 μm. The squares are the actual positions of the air-holes centers following the theoretical line. Additional air-holes, five in our case, with the maximal period are added at the end of the PhC mirrors in order to further increase the Q factor. The black line indicates the intensity profile of the Gaussian mode.

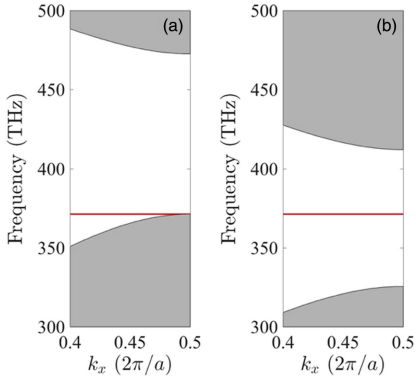

Fig. 1. Band diagram for a 1D PhC in a InGaP ridge waveguide having a width of 300 nm and a thickness of 150 nm. The periodicity of the PhC is 180 nm in (a) and 215 nm in (b). The radius of the air-holes is 60 nm. The red line shows the target resonance frequency at 375 THz corresponding to a wavelength of 800 nm. The gray areas are the dielectric (bottom) and air (top) bands.

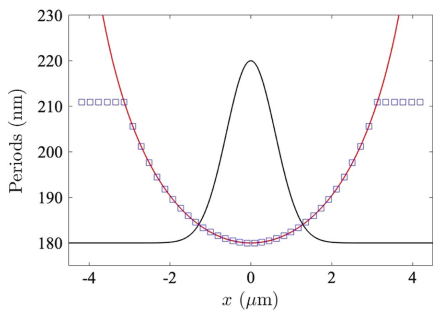

Fig. 2. Evolution of the period as a function of the mirror lengths. $x = 0$ corresponds to the center of the nanocavity. The red line is the theoretical behavior, and the blue squares are the real periods as a function of the real air-holes positions. The black line is the Gaussian mode profile with a FWHM of 1 μm.

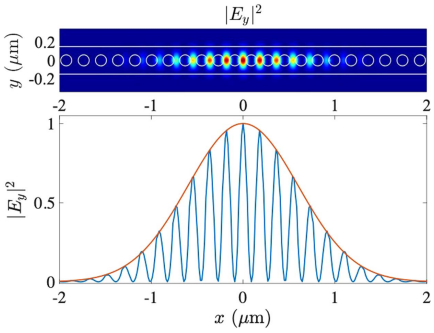

Fig. 3. 2D profile of the fundamental mode at 811 nm in the xy plane (top) and in the x direction for $y = 0$ (bottom, blue line). The red line represents a Gaussian envelope of the mode with a FWHM of 1 μm in intensity.

The optical properties of the designed InGaP nanobeam cavity are evaluated using three-dimensional finite-difference time-domain (3D FDTD) simulations implemented with LUMERICAL FDTD. We obtain a fundamental optical resonance at 811 nm, close to the target value, with a quality factor $Q = 1.5 \times 10^7$ and a mode volume of 0.01 μm^3, which is about $0.64(\lambda/n)^3$. The second- and third-order modes are at 823 and 836 nm, and have respectively Q factors of 3.6×10^6 and 2×10^6 with mode volumes of $0.81(\lambda/n)^3$ and $0.91(\lambda/n)^3$. Figure 3 shows the fundamental mode profile in the 2D xy plane of the cavity. The mode is mainly located between the air-holes in the dielectric as expected since we have fixed the target resonance frequency close to the dielectric band. The field intensity is maximum at the middle of the cavity where the period is $a = 180$ nm. Moreover, it has a Gaussian envelope as indicated by the red line.

The nanocavities are fabricated by first growing InGaP on a GaAs substrate using metal-organic chemical vapor deposition. The InGaP/GaAs is then bonded to a silicon-on-insulator Si/SiO_2 substrate using a benzocyclobutene polymer layer. Finally, the GaAs is removed using wet etching, obtaining thus the final 150-nm-thick InGaP layer on an SOI substrate. Electron-beam lithography is used afterwards to draw the designed PhC structures on the InGaP covered with a thin layer of electron-sensitive resist. After removing the non-exposed resist, the InGaP is etched using inductively coupled plasma reactive ion etching (ICP-RIE). Figure 4 shows scanning electron microscope (SEM) images of typical nanobeam cavities we have fabricated: (a) with two adjacent waveguides intended for evanescent side coupling to the cavity; (b) with inline waveguide for direct coupling. Figure 4(c) represents a SEM image of a typical grating fabricated at the extremities of the coupling waveguides. The Bragg gratings are used to couple in and out light to the waveguide from free space, usually from an optical fiber. The periodicity of the Bragg grating is 470 nm with a 50% duty cycle, so that the diffraction angle is ∼10° off the normal of the grating around $\lambda \approx 800$ nm in order to avoid back coupling into the fiber due to the second-order diffraction. The Bragg gratings are fabricated simultaneously with the nanobeam cavity by fully etching the InGaP on half the period. The gratings are 10 μm wide and 15 μm long. For a lossless propagation from the grating couplers to the nanobeam cavity, a 300-μm long optical taper is used between the 10-μm large gratings and the narrow (∼300 nm) width coupling waveguides [29].

During the fabrication process, we have varied different parameters to study their effect on the optical properties of PhC. In the case of the inline nanobeam cavities, we varied the periods of the PhC to tune the wavelengths of the optical resonances. More specifically, we change the central period a from 176 to 188 nm while keeping the maximal period at the edges at 215 nm. When increasing the period, the PhC bandgap is shifted toward lower energies. As a consequence, the resonant wavelengths, and more particularly the fundamental mode, are tuned to the red. For the nanobeam cavities with the side coupling strategy, we varied the width L of the coupling waveguides and the distance d between the cavity and the coupling waveguides. The parameters of the cavity, such as the central period of 180 nm and the maximal period of 215 nm, are kept constant. By construction, the nanobeam cavity and the coupling waveguides have identical thickness. When varying the width L, the wave vector k_w of the mode propagating in the coupling waveguides is tuned. The largest coupling to the cavity is obtained when k_w matches with the wave vector of the fundamental resonant mode [19], i.e., $k_0 = \pi/a$. As the period of the PhC mirrors of the cavity is not constant, a is determined by taking the Fourier transform of the mode represented in Fig. 3 (bottom sketch), obtaining $a = 182.6$ nm. $k_w = \pi/a$ is achieved for a waveguide width $L = 220$ nm.

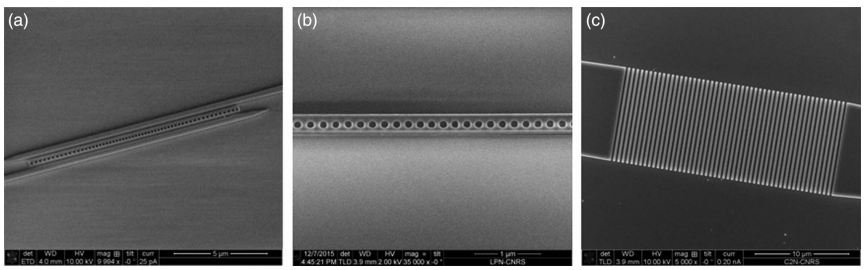

Fig. 4. Scanning electron microscope (SEM) image of (a) a nanocavity with two adjacent waveguides, (b) a nanocavity in the coupling waveguide, and (c) a typical Bragg grating for coupling from free space into the different nanocavities.

The distance d between the nanobeam cavity and the coupling waveguide will modify the overlap integral between the mode field of the cavity and the mode field of the coupling waveguide. Both L and d will impact the coupling strength, which can be quantified by an effective quality factor Q_c. The quality factor that will be measured experimentally is then given by $1/Q = 1/Q_0 + 1/Q_c$, where Q_0 is the intrinsic quality factor of the nanobeam cavity.

3. EXPERIMENTAL OBSERVATIONS

To investigate the fabricated nanobeam cavities, we used two laser sources. A pulsed Ti:sapphire laser delivering 20-nm-width pulses at a repetition rate of 80 MHz and a continuous-wave (cw) diode laser source tunable between 790 and 850 nm. The pulsed source is used to identify rapidly the wavelengths of the resonances by analyzing the spectrum of the pulses out of the nanobeam cavities using a 40 pm resolution spectrometer (Ocean Optics HR2000). For the measurement of the resonance linewidths and hence the associated Q factors, we used the CW diode laser with a resolution of 1 pm. A wavelength-meter (Ångstrom WS6-600) with a measurement resolution of 20 MHz is used to read accurately the wavelength. To couple the light into the nanocavities we used a cleaved single-mode fiber (Thorlabs 780HP), set at an incidence angle of about 10° in front of the Bragg grating. The laser is coupled to the nanobeam cavity after diffracting from the Bragg grating and propagating along the optical taper and in the coupling waveguides. The transmitted light is collected using a long working distance microscope objective (Mitutoyo M Plan NIR 10×) positioned above the output Bragg grating. We estimate the transmission to be about 0.04%. It is inferred from the measurement of the power incident on the Bragg grating and the power collected after the microscope objective. The collected light is then coupled to a fiber and sent either to the spectrometer or to a high-sensitivity Si photodiode.

When working with the inline nanobeam cavities, the transmission of the fundamental mode is weak and hard to observe. Figure 5 shows a typical spectrum measured with the spectrometer. In the spectrum of Fig. 5(a), the light was collected at the output Bragg grating with the microscope objective. For this particular nanobeam cavity the fundamental mode is at 830 nm. However, due to the weakness of the coupling it is not observable. The first observable resonance is associated to the second-order mode at 841 nm, as further shown in the spectrum of Fig. 5(b) obtained by collecting directly the light leaking above the cavity. Note that in this case the fundamental mode although weak, is clearly observable. The weak transmission of the fundamental mode is due to the wave vector mismatch between the resonant mode and the mode propagating in the waveguide holding the nanobeam cavity, which is 300 nm width. Furthermore, the spatial size of the fundamental mode along the propagation direction is very small (1 μm FWHM) compared to the dimension of the nanobeam cavity, as shown in Fig. 2. The resonant mode is thus strongly confined and hard to extract from the nanocavity. We did not succeed in measuring the Q factor of the fundamental mode because of the weakness of signal, even when collecting it above the cavity. We have nevertheless measured the Q factor of the second-order mode at 841 nm using the cw laser. Figure 6 shows the obtained spectrum from which we can deduce a quality factor $Q = 20,900$. According to the numerical FDTD simulations, the Q factor of the second-order mode is 1 order of magnitude smaller than that of the fundamental mode; we can thus expect a larger Q factor at 830 nm. However, the measured Q factors are still below the numerical simulations by 3 to 4 orders of magnitude. This is a common trend when working with such very small dimension PhC systems in which the propagating short-wavelength light becomes very sensitive to the surface imperfections. Indeed, the cavity mode is not tightly confined in the so small cross section of the nanobeam cavities. It is as well delocalized in the $InGaP/SiO_2$ interface presenting surface roughness causing extra losses.

As expected, when increasing the central period of the inline nanobeam cavity, the wavelengths of the resonant modes are tuned, shifting to the infrared. This is indeed represented in Fig. 7 for the first four modes we have measured using the pulsed source and the spectrometer. The depicted resonances are obtained by measuring mainly the transmitted light collected at the output Bragg grating. Additional spectra obtained by measuring the cavity leakage were, however, necessary to

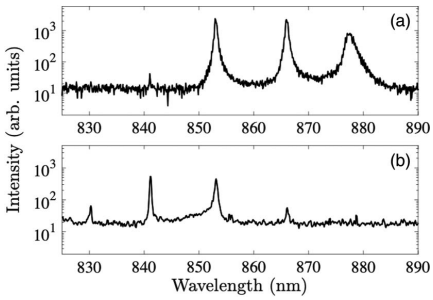

Fig. 5. Transmission spectra for an inline coupling nanobeam cavity. The light is collected with microscope objective (a) above the output Bragg grating, or (b) above the nanobeam cavity itself. The fundamental mode at 830 nm is not observed when light is collected at the output grating.

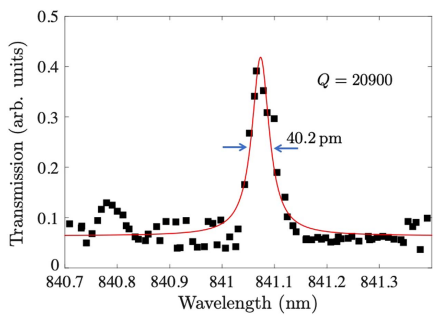

Fig. 6. Transmission of the second resonant mode of the nanobeam cavity (see Fig. 5). From the Lorentzian adjustment (red line) we can extract the resonant wavelength $\lambda = 841.07$ nm; the FWHM $\Delta\lambda = 40.2$ pm, which corresponds to a quality factor $Q = 20,900$.

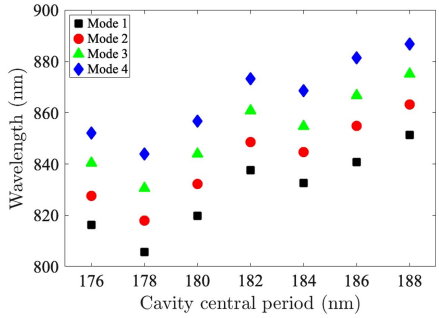

Fig. 7. First four resonant modes measured for an inline coupling nanobeam cavity when its central period is varied.

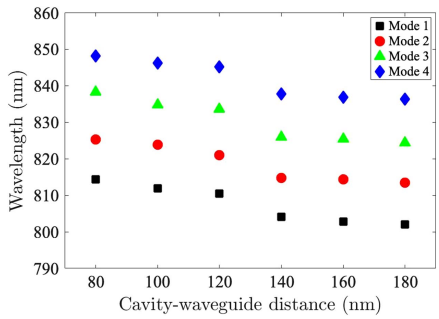

Fig. 8. First four resonant modes for side-coupled nanobeam cavity as a function of the cavity–waveguide distance. The width of the coupling waveguide is $L = 250$ nm.

confirm the wavelength of the fundamental mode. Similar measurements are done on the nanobeam cavities with the side coupling strategy. Figure 8 shows the first four modes measured using the pulsed laser source as a function of the cavity–waveguide distance. In the case of the side-coupled cavities, all the modes, and especially the fundamental one, are very well resolved. The coupling waveguides have a width of 250 nm. As the coupling waveguide gets closer to the cavity, the wavelengths of the modes shift to the infrared. Indeed the nanobeam cavity's effective index of refraction is altered, modifying the optical properties of the nanobeam cavity and hence its resonant wavelength. As the distance is increased, the coupling between the nanobeam cavity and the waveguide gets weaker, with negligible effects on the resonant modes. When the coupling waveguides are close to the nanobeam cavity, the transmission is higher. However, the resonances become broader due to the large leakage, which reduces the photons lifetime in the cavity. This is shown in Fig. 9 where the Q factor of the fundamental mode is plotted as a function of the distance d for a waveguide width $= 250$ nm. The quality factors are deduced by measuring the FWHM of the resonances using the cw laser. We show also in the inset that the Q factor goes down as the

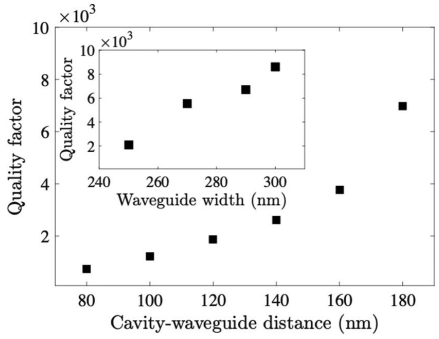

Fig. 9. Evolution of the Q factor as a function of the cavity–waveguide distance L for a fixed waveguide width $d = 250$ nm. Inset: Q factor as a function of the waveguide width d for a fixed distance $L = 120$ nm between the nanobeam cavity and the coupling waveguide.

width of the coupling waveguide is reduced. The quality factor should go down until $d \sim 200$ nm is reached, the width for which perfect phase matching is achieved between the resonant mode and the guided mode and hence optimum coupling. The best Q factor is below 10,000 for the side-coupled nanobeam cavities, a factor of 2 smaller than the Q factor of the inline nanobeam cavity. This is due to technological imperfections and the presence of extra coupling channels to the side waveguides.

4. CONCLUSION

In summary, we have proposed high-Q PhC nanobeam cavities with optical resonances at near-infrared wavelengths around 800 nm, ideally suited for performing cavity QED-like measurements with alkali atoms. We have fabricated cavities using side and inline coupling. The best measured Q factor is about 20,000. Though it is 3 orders of magnitude smaller than the predicted value, it is one of the highest Q factors measured at this short wavelength. We have shown that coarse tuning of the resonances can be easily achieved by a small change of the PhC parameters. Fine tuning can also be achieved by controlling the nanobeam cavities temperature.

Funding. Agence Nationale de la Recherche (ANR) (ANR-10-LABX-0035, UNIQ DS078, CONDOR, ICQOQS); Centre de Compétences Nanosciences Ile-de-France (CNANO) (DIM NANO-K PHONAPI).

Acknowledgment. The authors gratefully acknowledge Alejandro Giacomotti for helpful discussions.

REFERENCES

1. H. J. Kimble, "Strong interactions of single atoms and photons in cavity QED," Phys. Scripta **T76**, 127 (1998).
2. H. Walther, B. T. H. Varcoe, B.-G. Englert, and T. Becker, "Cavity quantum electrodynamics," Rep. Prog. Phys. **69**, 1325–1382 (2006).

3. I. Rousseau, I. Sánchez-Arribas, K. Shojiki, J.-F. Carlin, R. Butté, and N. Grandjean, "Quantification of scattering loss of III-nitride photonic crystal cavities in the blue spectral range," Phys. Rev. B **95**, 125313 (2017).
4. E. Yablonovitch, "Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics," Phys. Rev. Lett. **58**, 2059–2062 (1987).
5. S. John, "Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices," Phys. Rev. Lett. **58**, 2486–2489 (1987).
6. J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, and R. D. Meade, *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light*, 2nd ed. (Princeton University, 2011).
7. J. S. Foresi, P. R. Villeneuve, J. Ferrera, E. R. Thoen, G. Steinmeyer, S. Fan, J. D. Joannopoulos, L. C. Kimerling, H. I. Smith, and E. P. Ippen, "Photonic-bandgap microcavities in optical waveguides," Nature **390**, 143–145 (1997).
8. J. D. Joannopoulos, P. R. Villeneuve, and S. Fan, "Photonic crystals: putting a new twist on light," Nature **386**, 143–149 (1997).
9. O. Painter, R. K. Lee, A. Scherer, A. Yariv, J. D. O'Brien, P. D. Dapkus, and I. Kim, "Two-dimensional photonic band-gap defect mode laser," Science **284**, 1819–1821 (1999).
10. T. Asano, B. Song, Y. Akahane, and S. Noda, "Ultrahigh-Q nanocavities in two-dimensional photonic crystal slabs," IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **12**, 1123–1134 (2006).
11. Y. Lai, S. Pirotta, G. Urbinati, D. Gerace, M. Minkov, V. Savona, A. Badolato, and M. Galli, "Genetically designed L3 photonic crystal nanocavities with measured quality factor exceeding one million," Appl. Phys. Lett. **104**, 241101 (2014).
12. E. Kuramochi, M. Notomi, S. Mitsugi, A. Shinya, T. Tanabe, and T. Watanabe, "Ultrahigh-Q photonic crystal nanocavities realized by the local width modulation of a line defect," Appl. Phys. Lett. **88**, 041112 (2006).
13. T. Asano, Y. Ochi, Y. Takahashi, K. Kishimoto, and S. Noda, "Photonic crystal nanocavity with a Q factor exceeding eleven million," Opt. Express **25**, 1769–1777 (2017).
14. H. Sekoguchi, Y. Takahashi, T. Asano, and S. Noda, "Photonic crystal nanocavity with a Q-factor of ~9 million," Opt. Express **22**, 916–924 (2014).
15. B.-H. Ahn, J.-H. Kang, M.-K. Kim, J.-H. Song, B. Min, K.-S. Kim, and Y.-H. Lee, "One-dimensional parabolic-beam photonic crystal laser," Opt. Express **18**, 5654–5660 (2010).
16. Y. Halioua, A. Bazin, P. Monnier, T. J. Karle, I. Sagnes, G. Roelkens, D. V. Thourhout, F. Raineri, and R. Raj, "III-V photonic crystal wire cavity laser on silicon wafer," J. Opt. Soc. Am. B **27**, 2146–2150 (2010).
17. Q. Quan, P. B. Deotare, and M. Loncar, "Photonic crystal nanobeam cavity strongly coupled to the feeding waveguide," Appl. Phys. Lett. **96**, 203102 (2010).
18. Q. Quan and M. Loncar, "Deterministic design of wavelength scale, ultra-high Q photonic crystal nanobeam cavities," Opt. Express **19**, 18529–18542 (2011).
19. G. Crosnier, D. Sanchez, A. Bazin, P. Monnier, S. Bouchoule, R. Braive, G. Beaudoin, I. Sagnes, R. Raj, and F. Raineri, "High Q factor InP photonic crystal nanobeam cavities on silicon wire waveguides," Opt. Lett. **41**, 579–582 (2016).
20. J. Vuckovic, M. Loncar, H. Mabuchi, and A. Scherer, "Optimization of the Q factor in photonic crystal microcavities," IEEE J. Quantum Electron. **38**, 850–856 (2002).
21. K. Srinivasan and O. Painter, "Momentum space design of high-Q photonic crystal optical cavities," Opt. Express **10**, 670–684 (2002).
22. Y. Akahane, T. Asano, B.-S. Song, and S. Noda, "High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal," Nature **425**, 944–947 (2003).
23. Y. Akahane, T. Asano, B.-S. Song, and S. Noda, "Fine-tuned high-Q photonic-crystal nanocavity," Opt. Express **13**, 1202–1214 (2005).
24. A. Bazin, R. Raj, and F. Raineri, "Design of silica encapsulated high-Q photonic crystal nanobeam cavity," J. Lightwave Technol. **32**, 952–958 (2014).
25. F. O. Afzal, S. I. Halimi, and S. M. Weiss, "Efficient side-coupling to photonic crystal nanobeam cavities via state-space overlap," J. Opt. Soc. Am. B **36**, 585–595 (2019).
26. D. Taillaert, F. VanLaere, M. Ayre, W. Bogaerts, D. Van Throurhout, P. Bienstman, and R. Baets, "Grating couplers for coupling between optical fibers and nanophotonic waveguides," Jpn. J. Appl. Phys. **45**, 6071–6077 (2006).
27. Y. Ding, H. Ou, and C. Peucheret, "Ultrahigh-efficiency apodized grating coupler using fully etched photonic crystals," Opt. Lett. **38**, 2732–2734 (2013).
28. A. Bozzolla, L. Carroll, D. Gerace, I. Cristiani, and L. C. Andreani, "Optimising apodized grating couplers in a pure SOI platform to –0.5 dB coupling efficiency," Opt. Express **23**, 16289–16304 (2015).
29. Y. Fu, T. Ye, W. Tang, and T. Chu, "Efficient adiabatic silicon-on-insulator waveguide taper," Photonics Res. **2**, A41–A44 (2014).

129.175.97.14 {ts '2019-07-03 04:25:05'}

Bibliographie

[1] K. Bencheikh, J. Levenson, P. Grangier, and O. Lopez, "Quantum nondemolition demonstration via repeated backaction evading measurements," Phys. Rev. Lett. **75**(19), 3422 (1995).

[2] K. Honda, D. Akamatsu, M. Arikawa, Y. Yokoi, K. Akiba, S. Nagatsuka, T. Tanimura, A. Furusawa, and M. Kozuma, "Storage and Retrieval of a Squeezed Vacuum," Phys. Rev. Lett. **100**, 093,601 (2008).

[3] J. Appel, E. Figueroa, D. Korystov, M. Lobino, and A. I. Lvovsky, "Quantum Memory for Squeezed Light," Phys. Rev. Lett. **100**, 093,602 (2008).

[4] R. W. Boyd, M. G. Raymer, P. Narum, and D. J. Harter, "Four-wave parametric interactions in a strongly driven two-level system," Phys. Rev. A **24**, 411–423 (1981).

[5] E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, J. Levenson, and V. Rouget, "Ultraslow Light Propagation in an Inhomogeneously Broadened Rare-Earth Ion-Doped Crystal," Physical Review Letters **95**(14), 143,601 (2005). URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.95.143601`.

[6] K. Bencheikh, E. Baldit, S. Briaudeau, P. Monnier, J. Levenson, and G. Mélin, "Slow light propagation in a ring erbium-doped fiber," Opt. Express **18**(24), 25,642–25,648 (2010).

[7] V. Huet, A. Rasoloniaina, P. Guillemé, P. Rochard, P. Féron, M. Mortier, A. Levenson, K. Bencheikh, A. Yacomotti, and Y. Dumeige, "Millisecond Photon Lifetime in a Slow-Light Microcavity," Physical Review Letters **116**(13), 133,902 (2016). URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.116.133902`.

[8] K. Bencheikh, F. Gravier, J. Douady, J. Levenson, and B. Boulanger, "Triple photons : a challenge in nonlinear and quantum optics," Comptes Rendus Physique **8**(2), 206–220 (2007). URL `http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S1631070506001605`.

[9] E. A. R. González, A. Borne, B. Boulanger, J. A. Levenson, and K. Bencheikh, "Continuous-Variable Triple-Photon States Quantum Entanglement," Phys. Rev. Lett. **120**(4), 043,601 (2018).

[10] S. E. Harris, "Electromagnetically Induced Transparency," Physics Today **50**(7), 36–42 (1997).

[11] M. Fleischhauer and M. D. Lukin, "Dark-State Polaritons in Electromagnetically Induced Transparency," Phys. Rev. Lett. **84**, 5094–5097 (2000).

[12] W. Carnall, G. Goodman, K. Rajnak, and R. S. Rana, "A systematic analysis of the spectra of the lanthanides doped into single crystal LaF_3," J. Chem. Phys. **90**, 3443–3457 (1989).

[13] R. M. Macfarlane, "High-resolution laser spectroscopy of rare-earth doped insulators : a personal perspective," J. Lumin **100**, 1–20 (2002).

[14] R. W. Equall, Y. Sun, R. L. Cone, and R. M. Macfarlane, "Ultraslow optical dephasing in Eu^{3+} :Y_2SiO_5," Phys. Rev. Lett. **72**, 2179–2182 (1994).

[15] R. W. Equall, R. L. Cone, and R. M. Macfarlane, "Homogeneous broadening and hyperfine structure of optical transitions in Pr^{3+} :Y_2SiO_5," Phys. Rev. B **52**, 3963–3969 (1995). URL `https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.52.3963`.

[16] T. Böttger, C. W. Thiel, Y. Sun, and R. L. Cone, "Optical decoherence and spectral diffusion at 1.5 μm in Er^{3+} : Y_2SiO_5 versus magnetic field, temperature, and Er^{3+} concentration," Phys. Rev. B **73**, 075,101 (2006). URL `https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.73.075101`.

[17] O. Guillot-Noël, P. Goldner, Y. Du, E. Baldit, P. Monnier, and K. Bencheikh, "Hyperfine interaction of Er^{3+} ions in Y_2SiO_5 : An electron paramagnetic resonance spectroscopy study," Phys. Rev. B **74**(21), 1–8 (2006).

[18] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, "Electromagnetically Induced Transparency : Optics in coherent media," Rev. Mod. Phys. **77**, 633 (2005).

[19] K. M. Evenson, J. S. Wells, F. R. Petersen, B. L. Danielson, G. W. Day, R. L. Barger, and J. L. Hall, "Speed of Light from Direct Frequency and Wavelength Measurements of the Methane-Stabilized Laser," Phys. Rev. Lett. **29**, 1346–1349 (1972). URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.29.1346`.

[20] M. S. Bigelow, N. N. Lepeshkin, and R. W. Boyd, "Observation of Ultraslow Light Propagation in a Ruby Crystal at Room Temperature," Phys. Rev. Lett. **90**, 113,903 (2003). URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.90.113903`.

[21] L. V. Hau, S. E. Harris, Z. Dutton, and C. H. Behroozi, "Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas," Nature **397**(6720), 594–598 (1999). URL `http://dx.doi.org/10.1038/17561`.

[22] A. Kasapi, M. Jain, G. Y. Yin, and S. E. Harris, "Electromagnetically Induced Transparency : Propagation Dynamics," Phys. Rev. Lett. **74**, 2447–2450 (1995).

[23] M. M. Kash, V. A. Sautenkov, A. S. Zibrov, L. Hollberg, G. R. Welch, M. D. Lukin, Y. Rostovtsev, E. S. Fry, and M. O. Scully, "Ultraslow Group Velocity and Enhanced Nonlinear Optical Effects in a Coherently Driven Hot Atomic Gas," Phys. Rev. Lett. **82**, 5229–5232 (1999).

[24] S. Inouye, R. F. Löw, S. Gupta, T. Pfau, A. Görlitz, T. L. Gustavson, D. E. Pritchard, and W. Ketterle, "Amplification of Light and Atoms in a Bose-Einstein Condensate," Phys. Rev. Lett. **85**, 4225–4228 (2000).

[25] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, and P. R. Hemmer, "Observation of Ultraslow and Stored Light Pulses in a Solid," Phys. Rev. Lett. **88**, 023,602 (2001).

[26] M. Sargent, “Spectroscopic techniques based on Lamb’s laser theory,” Phys. Rep. **43**(5), 233–265 (1978).

[27] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, 1992).

[28] P.-C. Ku, F. Sedgwick, C. J. Chang-Hasnain, P. Palinginis, T. Li, H. Wang, S.-W. Chang, and S.-L. Chuang, “Slow light in semiconductor quantum wells,” Opt. Lett. **29**(19), 2291–2293 (2004).

[29] C. Sauvan, P. Lalanne, and J. P. Hugonin, “Slow-wave effect and mode-profile matching in photonic crystal microcavities,” Phys. Rev. B **71**, 165,118 (2005). URL `https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.71.165118`.

[30] E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, S. Briaudeau, J. Levenson, O. Guillot-Noël, and P. Goldner, “Identification of Λ-like systems in Er^{3+} :Y_{2}SiO_{5} and observation of electromagnetically induced transparency,” Phys. Rev. B **81**(14), 144,303 (2010). URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.81.144303`.

[31] P. Grinberg, K. Bencheikh, M. Brunstein, A. Yacomotti, Y. Dumeige, I. Sagnes, F. Raineri, L. Bigot, and J. Levenson, “Nanocavity Linewidth Narrowing and Group Delay Enhancement by Slow Light Propagation and Nonlinear Effects,” Phys. Rev. Lett. **109**(11), 113,903 (2012). URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.109.113903`.

[32] Y. Dumeige, A. M. Yacomotti, P. Grinberg, K. Bencheikh, E. Le Cren, and J. A. Levenson, “Microcavity-quality-factor enhancement using nonlinear effects close to the bistability threshold and coherent population oscillations,” Phys. Rev. A **85**, 063,824 (2012).

[33] D. E. Chang, V. Vuletić, and M. D. Lukin, “Quantum nonlinear optics ? photon by photon,” Nat. Photonics **8**, 685 (2014).

[34] S. Haroche and J.-M. Raimond, *Exploring the Quantum : Atoms, Cavities, and Photons* (Oxford University Press, Oxford, 2006).

[35] J. D. Thompson, T. G. Tiecke, N. P. De Leon, J. Feist, A. V. Akimov, M. Gullans, A. S. Zibrov, V. Vuletić, and M. D. Lukin, “Coupling a single trapped atom to a nanoscale optical cavity,” Science **340**(6137), 1202–1205 (2013).

[36] T. G. Tiecke, J. D. Thompson, N. P. De Leon, L. R. Liu, V. Vuletić, and M. D. Lukin, “Nanophotonic quantum phase switch with a single atom,” Nature **508**(7495), 241–244 (2014).

[37] A. Goban, C.-L. Hung, S.-P. Yu, J. Hood, J. Muniz, J. Lee, M. Martin, A. McClung, K. Choi, D. Chang, O. Painter, and H. Kimble, “Atom-light interactions in photonic crystals,” Nat. Commun. **5**(May), 3808 (2014).

[38] I. Saber, “Design an Fabrication of nanophotonics platforms for strong coupling around 800 nm,” Theses, Université Paris-Saclay (2018). URL `https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01923319`.

[39] A. Bazin, R. Raj, and F. Raineri, “Design of Silica Encapsulated High-Q Photonic Crystal Nanobeam Cavity,” J. Lightwave Technol. **32**(5), 952–958 (2014).

[40] J. Vuckovic, M. Loncar, H. Mabuchi, and A. Scherer, “Optimization of the Q factor in photonic crystal microcavities,” IEEE J. Quantum Electron. **38**(7), 850–856 (2002).

[41] K. Srinivasan and O. Painter, "Momentum space design of high-Q photonic crystal optical cavities." Opt. Express **10**(15), 670–84 (2002).

[42] T. Asano, B. Song, Y. Akahane, and S. Noda, "Ultrahigh-Q Nanocavities in Two-Dimensional Photonic Crystal Slabs," IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **12**(6), 1123–1134 (2006).

[43] Y. Akahane, T. Asano, B.-S. Song, and S. Noda, "High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal," Nature **425**(6961), 944–947 (2003).

[44] Y. Akahane, T. Asano, B.-S. Song, and S. Noda, "Fine-tuned high-Q photonic-crystal nanocavity," Opt. Express **13**(4), 1202–1214 (2005).

[45] Q. Quan and M. Loncar, "Deterministic design of wavelength scale, ultra-high Q photonic crystal nanobeam cavities," Opt. Express **19**(19), 18,529 (2011).

[46] G. Crosnier, D. Sanchez, A. Bazin, P. Monnier, S. Bouchoule, R. Braive, G. Beaudoin, I. Sagnes, R. Raj, and F. Raineri, "High Q factor InP photonic crystal nanobeam cavities on silicon wire waveguides," Opt. Lett. **41**(3), 579–582 (2016).

[47] Q. Quan, P. B. Deotare, and M. Loncar, "Photonic crystal nanobeam cavity strongly coupled to the feeding waveguide," Appl. Phys. Lett. **96**(20), 17–20 (2010).

[48] Y. Fu, T. Ye, W. Tang, and T. Chu, "Efficient adiabatic silicon-on-insulator waveguide taper," Photon. Res. **2**(3), A41–A44 (2014).

[49] F. Gravier and B. Boulanger, "Triple-photon generation : comparison between theory and experiment," J. Opt. Soc. Am. B **25**(1), 98–102 (2008).

[50] U. Leonhardt, *Measuring the quantum state of light* (Cambridge University Press, 1997).

[51] G. Breitenbach, T. Müller, S. F. Pereira, J.-P. Poizat, S. Schiller, and J. Mlynek, "Squeezed vacuum from a monolithic optical parametric oscillator," J. Opt. Soc. Am. B **12**(11), 2304–2309 (1995).

[52] D. T. Smithey, M. Beck, M. G. Raymer, and A. Faridani, "Measurement of the Wigner distribution and the density matrix of a light mode using optical homodyne tomography : Application to squeezed states and the vacuum," Phys. Rev. Lett. **70**, 1244–1247 (1993). URL `https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.70.1244`.

[53] I. Abram, R. K. Raj, J. L. Oudar, and G. Dolique, "Direct Observation of the Second-Order Coherence of Parametrically Generated Light," Phys. Rev. Lett. **57**, 2516–2519 (1986). URL `https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.57.2516`.

[54] A. Dot, A. Borne, B. Boulanger, K. Bencheikh, and J. A. Levenson, "Quantum theory analysis of triple photons generated by a khi(3) process," Phys. Rev. A **85**(February), 023,809 (2012). URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.85.023809`.

[55] P. van Loock and A. Furusawa, "Detecting genuine multipartite continuous-variable entanglement," Phys. Rev. A **67**, 052,315 (2003).

[56] R. Y. Teh and M. D. Reid, "Criteria for genuine N-partite continuous-variable entanglement and Einstein-Podolsky-Rosen steering," Phys. Rev. A **90**, 062,337 (2014).

[57] P. Hamel, P. Grinberg, C. Sauvan, P. Lalanne, A. Baron, A. M. Yacomotti, I. Sagnes, F. Raineri, K. Bencheikh, and J. A. Levenson, "Coupling light into a slow-light photonic-crystal waveguide from a free-space normally-incident beam," Opt. Express **21**(13), 15,144 (2013). URL `http://www.opticsinfobase.org/abstract.cfm?URI=oe-21-13-15144`.

[58] P. Grinberg, "Slow light in two dimensional semi-conductor photonic crystals," Theses, Université Paris Sud - Paris XI (2012). URL https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00830962.