

ORSAY  
n° d'ordre:

*D. Paul*

# THESE

DE DOCTORAT EN SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

**PAUL TCHÉNIO**

LABORATOIRE AIME COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR EN SCIENCES

☆☆☆

**TRANSITOIRES COHERENTS EN LUMIERE INCOHERENTE**

**EFFETS DE CHAMP FORT**

SOUTENUE LE 17 Janvier 1989 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM. A. BESWICK  
A. ASPECT  
J.-P. GAUYACQ  
J.-C. KELLER  
J.-L. LE GOUËT  
P. ZOLLER

Président



*Le présent travail a été effectué au Laboratoire Aimé Cotton . Je tiens à rendre hommage à la mémoire de S. Liberman dont j'admirais les qualités humaines et scientifiques . Il m'a accueilli chaleureusement dans son Laboratoire et m'a toujours prodigué ses encouragements .*

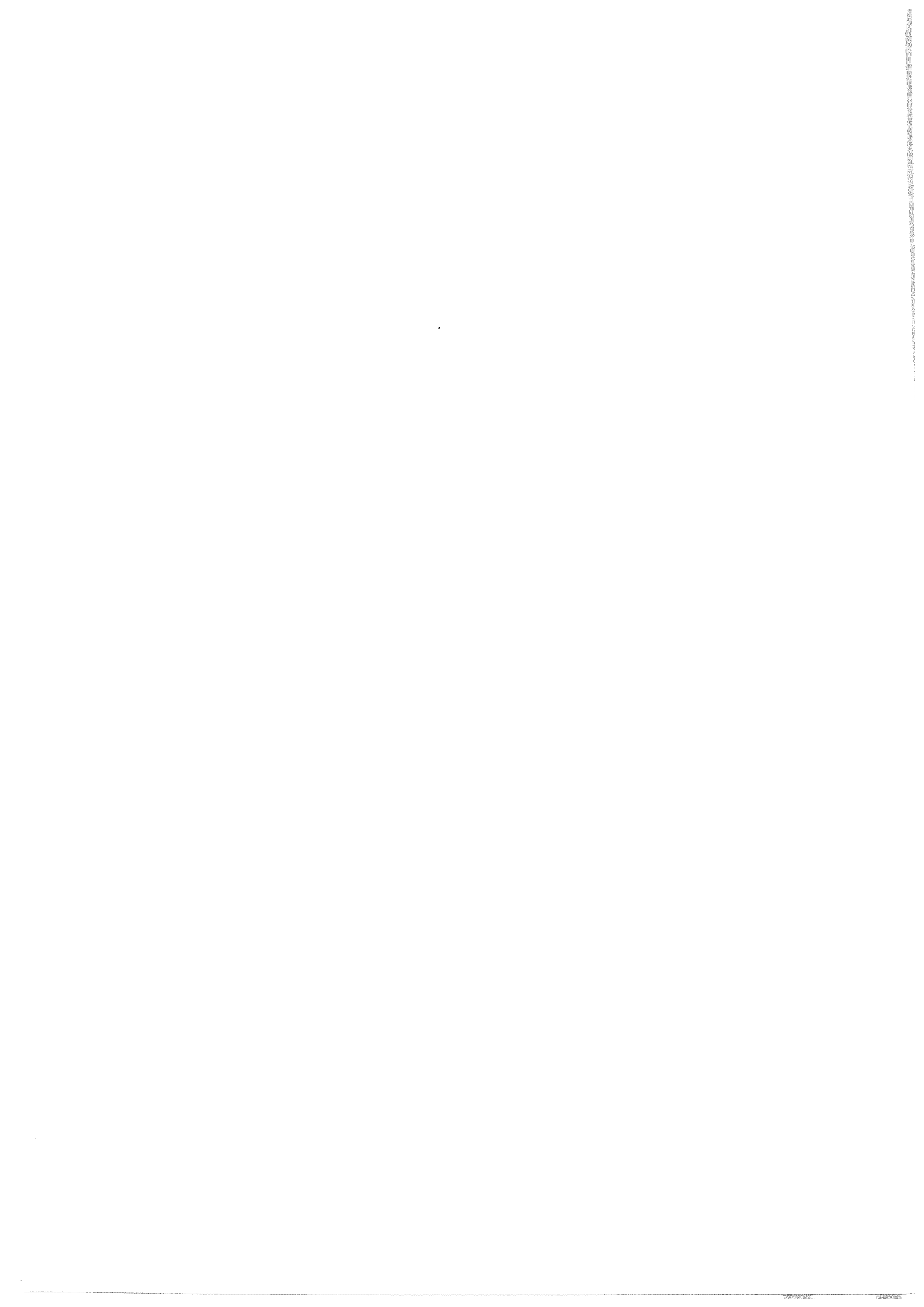
*Je tiens à exprimer ma sincère reconnaissance à l'équipe des échos de photon . Anne Débarre , Jean-Claude Keller et Jean-Louis Le Gouët ont dirigé ce travail et m'ont fait profiter à tout instant de leur grande compétence scientifique et de leur amitié . Ils ont guidé mes premiers pas sans ménager leurs efforts . Ils ont su me faire partager leur enthousiasme pour la physique atomique et ses expériences à l'échelle humaine .*

*Je leur dois d'avoir pu terminer ce travail dans les délais qui m'étaient impartis et je leur en suis profondément reconnaissant .*

*J'adresse aussi mes remerciements à l'ensemble du Laboratoire Aimé Cotton , chercheurs , ingénieurs , techniciens et administratives qui ont contribué au bon déroulement de ce travail par leur aide permanente et leur accueil chaleureux . Je tiens à remercier en particulier Alain Richard qui a assuré l'informatisation des expériences .*

*A Messieurs Aspect , Beswick , Gauyacq et Zoller , pour l'intérêt qu'ils ont porté à cette étude en acceptant de faire partie de mon jury de thèse , je tiens à exprimer mes plus vifs remerciements .*

*Je remercie enfin ma femme dont la patience et l'aide m'ont permis de mener à bien ce travail .*



## TABLE DES MATIERES

CHAPITRE I - INTRODUCTION	1
CHAPITRE II - TRANSITOIRES OPTIQUE COHERENT EN LUMIERE INCOHERENTE - LIMITE DES CHAMPS FAIBLES	5
A - Introduction	5
B - Diffusion Rayleigh cohérente - Rayonnement de précession libre	8
C - Diffraction par un réseau spectral transitoire	13
D - Diffraction par un réseau formé par deux impulsions décalées dans le temps - Echos de photon stimulé	18
CHAPITRE III - ECHOS DE PHOTONS STIMULES EN LUMIERE COHERENTE - LIMITE DES CHAMPS FAIBLES	26
A - Introduction	26
B - Formation d'un réseau de population	30
B-1 - Spectre de puissance de deux impulsions corrélées	30
B-2 - Excitation sans relaxation	31
B-3 - Excitation en présence d'une forte relaxation	33
C - Lecture du réseau	36
C-1 - Lecture par une impulsion brève	36
C-1-a - Réseau inscrit en régime de relaxation faible	36
C-1-b - Réseau inscrit en régime de relaxation forte	37
C-2 - Lecture par une impulsion longue	39
D - Expériences de spectroscopie cohérente en lumière incohérente	40
D-1 - Mesures de relaxation rapide	40
D-2 - Excitation cohérente sur un large domaine spectral	40
E - Conclusion	42

<b>CHAPITRE IV - ECHOS DE PHOTONS EN LUMIERE INCHORENTE - EFFETS DE CHAMP FORT</b>	<b>44</b>
A - Introduction	44
B - Expression formelle du signal	47
B-1 - Le modèle	47
B-2 - Expression formelle du signal produit par une réalisation unique de l'excitation	48
B-3 - Expression formelle de la moyenne statistique du signal	52
B-4 - Propriétés statistiques du champ	54
B-5 - Temps caractéristique d'évolution du système atomique	57
B-6 - Régime de champ fort	60
B-7 - Analyse des configurations de champ intense de mélange à quatre ondes	62
B-7-a - Inscription du réseau par deux impulsions corrélées dont l'une est intense	62
B-7-b - Lecture par une impulsion intense	63
C - Situation expérimentale	65
C-1 - Choix du système atomique	65
C-2 - Dispositif expérimental	67
C-2-a - Sources lumineuses	69
C-2-b - Sélection du signal	69
C-2-c - Ligne à retard variable	70
C-2-d - Acquisition	72
C-2-e - Corrélation d'amplitude	72
C-3 - Résultats expérimentaux	72
C-3-a - Impulsion de lecture intense	72
C-3-b - Inscription du réseau par deux impulsions dont l'une est intense	72
D - Bilan de l'étude en champ fort	76
D-1 - Impulsion de lecture intense - Blocage du déphasage inhomogène	76
D-2 - Inscription du réseau transitoire par deux impulsions dont l'une est intense	79
<b>CHAPITRE V - CONCLUSION</b>	<b>81</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	<b>83</b>

## ARTICLES PRESENTES

Article 1 : Population grating induced by time-delayed, correlated, broadband light pulses in the strong field regime.

Article 2 : Optical coherent transients induced by time-delayed correlated broad-bandwidth pulses in the strong field regime.

Article 3 : An amplitude correlator for broad-band laser source characterization.

Article 4 : Inhibition of inhomogeneous dephasing by a strong optical field.

Article 5 : Non Markovian strong field excitation of optical coherent transients.





## CHAPITRE I

## I N T R O D U C T I O N

L'excitation résonnante d'une vapeur atomique par une impulsion laser crée des dipôles oscillants, qui sont tous initialement en phase avec l'onde excitatrice. Ils présentent donc entre eux une relation de phase. Leur rayonnement reflète cette propriété de cohérence spatiale. Il est désigné sous le nom de transitoire optique cohérent. Les signaux de précession libre [1], de nutation optique [2], d'écho de photon [3], de diffraction sur un réseau transitoire et plus généralement de mélange à quatre ondes [4] sont de cette nature.

Parmi ces processus, les échos de photon, la diffraction sur un réseau transitoire et le mélange à quatre ondes se sont révélés des outils bien adaptés aux mesures de relaxation atomique et moléculaire. D'une part, ces signaux peuvent être isolés des impulsions excitatrices et être donc observés sur fond noir. D'autre part, un choix convenable de la séquence excitatrice permet d'étudier sélectivement une quantité atomique donnée, population d'un niveau atomique (i.e. élément diagonal de la matrice densité) ou cohérence entre deux états (i.e. élément non diagonal de la matrice densité). Dans ce type d'expérience, les mesures de temps de relaxation sont déduites des variations du signal en fonction des retards entre impulsions.

Lorsque la largeur spectrale  $\Delta_L$  des impulsions excitatrices coïncide avec l'inverse de leur durée  $\tau_L$  (spectre limité par transformée de Fourier), l'intervalle entre impulsions est déterminé à  $\tau_L$  près. Les travaux récents de plusieurs groupes japonais [5, 6] ont montré l'intérêt que présente l'excitation produite par des impulsions à large bande spectrale, telles que  $\Delta_L \tau_L \gg 1$ . Selon ces travaux, l'intervalle entre deux impulsions corrélées, obtenues par dédoublement d'un seul faisceau lumineux initial, peut en effet être déterminé avec une résolution égale au temps de cohérence  $\tau_c$  du champ. Le temps de cohérence n'est rien d'autre que

l'inverse de la largeur spectrale. Pour des impulsions à large bande ( $\Delta_L \tau_L \gg 1$ ), le temps  $\tau_c = \Delta_L^{-1}$  est beaucoup plus petit que  $\tau_L$ . Le domaine opératoire des expériences pour la mesure des temps de relaxation se trouve ainsi étendu vers les temps très courts, beaucoup plus petits que la durée des impulsions excitatrices. Des mesures de temps de relaxation subpicoseconde ont ainsi été réalisées à l'aide de simples sources nanoseconde [7, 8].

Dans ce type d'expérience, l'intervalle entre impulsions corrélées est plus court que leur durée, et les impulsions se chevauchent. Le système évolue sous l'effet conjugué du champ excitateur et du processus de relaxation. Reconnaître la contribution particulière de chacun de ces deux effets est nécessaire pour extraire des données expérimentales une mesure du taux de relaxation. Une telle étude a été réalisée en champ faible [6]. Elle est cependant impuissante à prévoir comment les signaux évoluent en fonction de l'intensité du champ, et où se situe la frontière entre le régime de champ faible et celui de champ fort. La réponse à ces questions devrait permettre de préciser si le régime de champ faible est le mieux adapté à la mesure des temps de relaxation très courts.

L'examen de ces situations de champ fort révèle de nouveaux aspects du problème fondamental de l'interaction d'un système atomique avec un champ large bande intense. Jusqu'à présent, l'étude de ce type d'interaction a été limitée au cas de l'excitation multiphotonique résonnante [9] et de la fluorescence à résonance [10]. Les transitoires cohérents diffèrent de ces processus par la nature des quantités atomiques mises en jeu et par le caractère particulier de l'excitation réalisée par deux impulsions jumelles.

L'intensité des signaux d'excitation multiphotonique résonnante et de fluorescence à résonance est une fonction de la valeur moyenne, à un instant donné, de la population du niveau atomique peuplé par l'excitation. Cette quantité peut être considérée comme un moment statistique à un seul atome. En revanche, les transitoires cohérents s'expriment en fonction de moments statistiques à deux atomes qui représentent la corrélation entre les dipôles émetteurs. Une autre spécificité de ces transitoires cohérents réside dans le caractère statistique non Markovien du processus d'excitation par

deux impulsions jumelles. De ces propriétés résultent des effets de saturation particuliers que ce travail met en lumière.

La configuration retenue pour notre étude est celle qu'ont mise en jeu plusieurs mesures de temps de relaxation ultracourts réalisées à l'aide d'impulsions large bande [5, 8, 11]. Le signal observé est dû à la diffraction d'une onde sonde sur un réseau transitoire.

Dans le Chapitre II, nous supposons que les impulsions excitatrices sont beaucoup plus courtes que tous les temps caractéristiques du système atomique. Les deux premières impulsions font un petit angle entre elles et sont décalées dans le temps. Elles inscrivent un réseau de population dans l'échantillon. Une troisième impulsion lit le réseau formé. On mesure l'énergie diffractée par le réseau en fonction de l'écart entre les deux premières impulsions. On montre qu'on peut déterminer ainsi très directement le temps de déphasage homogène  $\gamma_{ab}^{-1}$ .

Dans le Chapitre III, on suppose que l'excitation est due à des impulsions de lumière incohérente dont la durée est beaucoup plus grande que l'inverse de la largeur inhomogène de la transition atomique considérée. Les deux premières impulsions sont corrélées, c'est-à-dire obtenues par dédoublement, retard différentiel et recombinaison à partir d'un seul faisceau initial de lumière incohérente. Les deux premières impulsions s'éteignent avant l'arrivée de la troisième impulsion, issue d'une source indépendante. Le processus est analysé dans la limite du champ faible.

Le Chapitre IV est consacré à l'étude des effets de champ fort dans ce processus. Pour isoler ces effets de ceux inhérents à la relaxation atomique, nous considérons le cas modèle où la relaxation est négligeable. D'autre part, nous restreignons l'étude au cas où une seule des trois impulsions excitatrices est intense. Cette condition est satisfaite dans deux situations différentes. Dans la première, le réseau de population est inscrit par deux impulsions corrélées dont l'une est intense. Il est lu par une impulsion de faible intensité. Les aspects théoriques de ce problème sont décrits dans les articles n° 1 "Population grating induced by time-delayed, correlated, broadband light pulses in the strong field regime" et n° 2 "Optical coherent transients induced by time-delayed correlated broad-band-

width pulses in the strong field regime". Les aspects expérimentaux sont traités dans les articles n° 3 "An amplitude correlator for broadband laser source characterization" et n° 5 "Non Markovian strong field excitation of optical coherent transients". Dans la seconde situation, le réseau de population, inscrit par des impulsions de faible intensité, est lu par une impulsion intense. Les aspects théoriques et expérimentaux de ce travail sont décrits dans l'article 4 "Inhibition of inhomogeneous dephasing by a strong optical field".

Le Chapitre IV propose une approche synthétique de ces deux situations de champ fort. Il présente ensuite un bilan des résultats obtenus. A la lumière de ces résultats, on examine le problème posé par la mesure des relaxations ultrarapides en régime de champ fort.

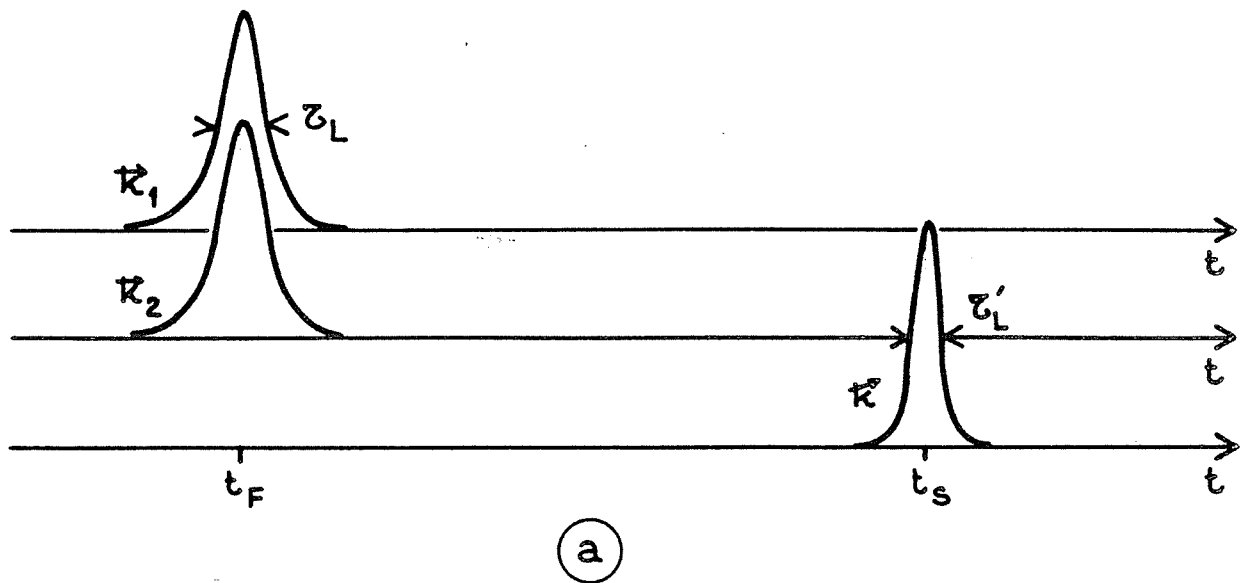
La conclusion passe en revue les prolongements possibles de ces études.

## CHAPITRE II

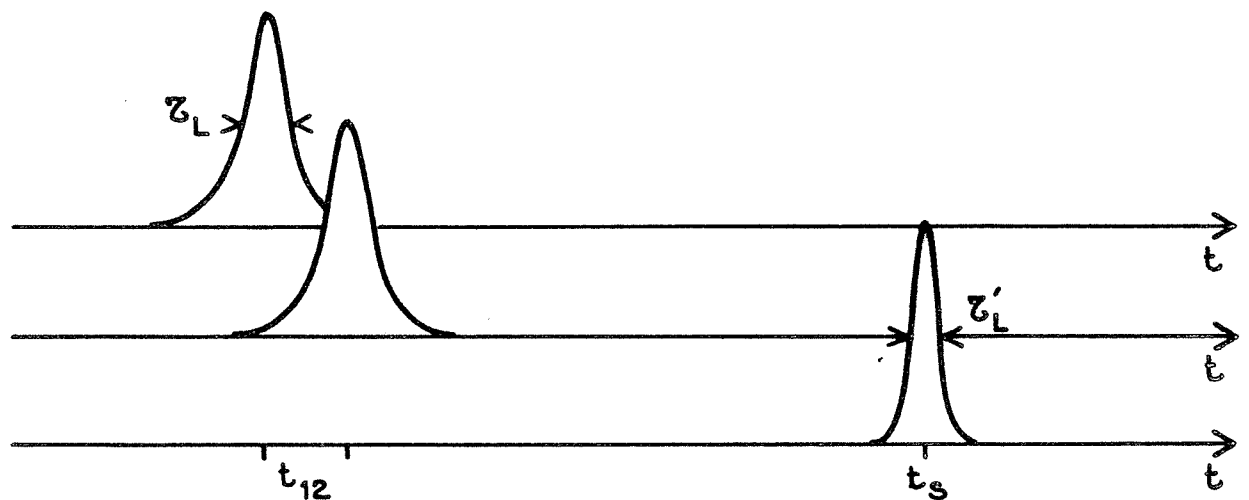
TRANSITOIRES OPTIQUES COHERENTS EN LUMIERE COHERENTE  
LIMITE DES CHAMPS FAIBLES

## A - INTRODUCTION

Ce chapitre décrit la formation de rayonnement transitoire cohérent dans une vapeur atomique. Un premier paragraphe considère l'excitation résonnante d'un échantillon à l'équilibre thermodynamique par une impulsion lumineuse brève. Les propriétés géométriques et temporelles de la diffusion Rayleigh cohérente sont mises en évidence. Dans un second paragraphe, l'impulsion lumineuse est diffusée par un échantillon dans lequel deux faisceaux laser synchrones ont préalablement inscrit leur figure d'interférence sous la forme d'un réseau de Bragg transitoire [Fig. 1a]. On décrit la diffraction de l'impulsion sonde par ce réseau en précisant les mécanismes de relaxation de ce réseau et en indiquant comment une telle expérience permet de les étudier. Dans le troisième paragraphe, on suppose que les atomes conservent la mémoire de la phase du champ exciteur. On considère alors le réseau inscrit dans l'échantillon par deux impulsions laser séparées dans le temps mais dont la figure d'interférence se matérialise cependant dans l'échantillon sous la forme d'un réseau de Bragg, en raison de la mémoire de phase atomique [Fig. 1b]. La diffraction de l'impulsion sonde par ce réseau donne naissance à un signal décalé dans le temps par rapport à l'instant de lecture. On reconnaît dans le signal un écho de photon stimulé. Le réseau de Bragg transitoire s'exprime en fonction de la densité spectrale d'énergie de la somme des deux champs impliqués dans sa formation, malgré la séparation temporelle de ces champs. Cette image spectrale est bien adaptée au cas où l'intervalle entre les deux impulsions génératrices du réseau reste très inférieur à la durée de la mémoire de phase atomique. Sinon, une description temporelle est plus adéquate. Le quatrième paragraphe lui est consacré.



(a)



(b)

Figure 1 : Séquence d'excitation dans une configuration de mélange à quatre ondes. Les impulsions de vecteur d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  inscrivent dans l'échantillon un réseau transitoire. L'onde de lecture de vecteur  $\vec{k}$  est diffractée par ce réseau. Les impulsions sont toutes limitées par transformée de Fourier.

- a) Les deux premières impulsions sont simultanées (Chap. II § C).
- b) Mélange à quatre ondes décalées dans le temps (Chap. II § D).

La durée  $\tau_L$  des impulsions laser impliquées dans la formation des signaux est supposée très courte par rapport à tous les temps caractéristiques de la transition atomique considérée. Tout au long de ce chapitre, les inégalités suivantes seront donc vérifiées :

$$\gamma_{ab} \tau_L \ll 1, \Delta_D \tau_L \ll 1$$

où  $\gamma_{ab}$  et  $\Delta_D$  sont respectivement la largeur homogène et la largeur inhomogène (Doppler) de la raie spectrale associée à la transition entre les états atomiques a et b.

## B - DIFFUSION RAYLEIGH COHERENTE - RAYONNEMENT DE PRECESSION LIBRE

Nous considérons un échantillon gazeux formé d'atomes dont l'état fondamental a est couplé à un état excité b par une transition dipolaire électrique, dans le domaine des fréquences optiques. L'échantillon est éclairé par une impulsion laser, accordée à résonance avec la transition a-b, polarisée suivant Ox, qui se propage dans la direction Oz. Le champ appliqué n'est pas perturbé par la traversée de l'échantillon supposé optiquement mince. C'est donc avec le même champ qu'interagissent effectivement tous les atomes. L'état interne des atomes de vitesse  $\vec{v}$ , qui passent au point  $\vec{r}$  à l'instant t, est décrit par la matrice densité  $\rho(\vec{r}, \vec{v}, t)$  [12]. L'impulsion lumineuse induit dans l'échantillon une densité de polarisation macroscopique oscillante :

$$P(\vec{r}, t) = \text{Tr } \mu \rho = \int d\vec{v} \rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) \mu_{ab} + \text{C.C.} \quad (\text{II.1})$$

où  $\mu_{ab}$  est le moment dipolaire associé à la transition a-b et  $\rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t)$  est un élément non diagonal de la matrice densité :

$$\rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) = \langle a | \rho(\vec{r}, \vec{v}, t) | b \rangle$$

Cette densité de polarisation est la source d'un rayonnement électromagnétique qui a la même fréquence que l'impulsion excitatrice. L'émission de ce rayonnement est un processus de diffusion Rayleigh. Les propriétés géométrique et temporelle de ce rayonnement sont déterminées par la résolution de l'équation d'onde, dont le terme source  $P(\vec{r}, t)$  est calculé à partir de l'équation du mouvement atomique.

Les degrés de liberté externes des atomes sont décrits par la Mécanique Classique et les trajectoires sont supposées rectilignes. La densité atomique est supposée suffisamment faible pour que l'intervalle de temps moyen entre deux collisions soit très supérieur à la durée de l'expérience. Le champ électromagnétique appliqué est une onde plane infinie dont la composante électrique est :

$$E_x(z, t) = 2 \xi(t) \cos(\omega_{ab} t - kz) \quad (\text{II.2})$$



où le temps caractéristique d'évolution de l'amplitude  $\xi(t)$  est de l'ordre de grandeur de la durée  $\tau_L$  de l'impulsion. La largeur spectrale  $\Delta_L$  et la durée  $\tau_L$  de l'impulsion satisfont alors la relation  $\Delta_L \tau_L \simeq 1$ . On dit que le spectre de l'impulsion lumineuse est "limité par transformée de Fourier".

L'équation atomique du mouvement atomique s'écrit alors :

$$i\hbar \dot{\rho} + i\hbar \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho = [H, \rho] + \text{relaxation} \quad (\text{II.3})$$

Le hamiltonien total  $H$  est composé du hamiltonien atomique  $H_0$ , dont les états  $a$  et  $b$  sont vecteurs propres :

$$\langle a | H_0 | a \rangle = \hbar \omega_a$$

$$\langle b | H_0 | b \rangle = \hbar \omega_b, \quad \omega_{ab} = \omega_b - \omega_a$$

et du hamiltonien d'interaction avec le champ :

$$H_{\text{int}} = -\mu_x E_x(z, t)$$

dont les éléments de matrice non nuls sont :

$$\langle a | H_{\text{int}} | b \rangle = \langle b | H_{\text{int}} | a \rangle = -\mu_{ab} E_x(z, t)$$

La relaxation est décrite par des taux de décroissance phénoménologiques. Le taux de relaxation de  $\rho_{ab}$  est noté  $\gamma_{ab}$ . Dans le système fermé a-b, le dépeuplement du niveau  $b$ , caractérisé par le taux  $\gamma_b$ , s'accompagne du peuplement du niveau  $a$  au même taux. L'équation (II.3) s'écrit donc explicitement :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\rho}_{aa} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho_{aa} = i \frac{\mu_{ab} E_x(z, t)}{\hbar} (\rho_{ba} - \rho_{ab}) + \gamma_b \rho_{bb} \\ \dot{\rho}_{bb} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho_{bb} = -i \frac{\mu_{ab} E_x(z, t)}{\hbar} (\rho_{ba} - \rho_{ab}) - \gamma_b \rho_{bb} \\ \dot{\rho}_{ab} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho_{ab} = i \frac{\mu_{ab} E_x(z, t)}{\hbar} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) + (i \omega_{ab} - \gamma_{ab}) \rho_{ab} \end{array} \right. \quad (\text{II.4})$$

Pour un échantillon homogène spatialement, en l'absence de changements de vitesse collisionnels, la quantité  $\rho_{aa} + \rho_{bb}$ , qui représente la densité atomique dans l'espace des phases, est une constante du mouvement. On adopte la notation  $\rho_{aa} + \rho_{bb} = N n(\vec{v})$  où  $N$  est la densité volumique des atomes et  $n(\vec{v})$  est la distribution de vitesse de Maxwell Boltzmann. La différence des densités atomiques dans les états a et b est notée  $n_{ab} = \rho_{bb} - \rho_{aa}$ .

Dans l'approximation des ondes tournantes [13], où ne sont conservés que les termes résonnants, le système différentiel A.II.4 s'écrit ; pour les atomes de vitesse  $\vec{v}$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{n}_{ab} = 2 i \chi (\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ba}) - \gamma_b n_{ab} - \gamma_b N n(\vec{v}) \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ab} = i \chi n_{ab} + i \vec{k} \cdot \vec{v} \tilde{\rho}_{ab} - \gamma_{ab} \tilde{\rho}_{ab} \end{array} \right. \quad (\text{II.5})$$

où  $\chi(t) = \frac{\mu_{ab} \xi(t)}{h}$ ,  $\tilde{\rho}_{ab}(\vec{v}, t) = \rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) e^{-i(\omega_{ab} t - \vec{k} \cdot \vec{r})}$ . On reconnaît dans  $\chi(t)$  la fréquence de Rabi et dans  $\vec{k} \cdot \vec{v}$  le déplacement Doppler. La largeur Doppler de la raie spectrale associée à la transition a-b est de l'ordre de  $\Delta_D = k\bar{v}$  où  $\bar{v}$  est la vitesse quadratique moyenne des atomes.

L'impulsion excitatrice est considérée comme faible si son aire  $\theta = \int \chi(t) dt$  satisfait la condition  $\theta \ll 1$ . Au premier ordre en  $\theta$ , la cohérence  $\tilde{\rho}_{ab}(\vec{v}, t)$  induite par l'impulsion s'écrit alors :

$$\tilde{\rho}_{ab}(\vec{v}, t) = -i \int_{-\infty}^t dt_1 \chi(t_1) N n(\vec{v}) e^{(i \vec{k} \cdot \vec{v} - \gamma_{ab})(t - t_1)} \quad (\text{II.6})$$

L'impulsion lumineuse excite l'échantillon autour de l'instant  $t_s$ . L'expression de la cohérence  $\rho_{ab}$  prend alors la forme :

$$\rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) = i \theta N n(\vec{v}) e^{i \omega_{ab} t - i \vec{k} \cdot \vec{r} + (i \vec{k} \cdot \vec{v} - \gamma_{ab})(t - t_s)} \quad (\text{II.7})$$

La polarisation macroscopique induite dans l'échantillon s'obtient en substituant l'expression A.II.7 à  $\rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t)$  dans l'équation A.II.1. Le champ  $E_R(\vec{r}, t)$  rayonné par cette polarisation est solution de l'équation d'onde [14] :

$$\Delta E_R(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_R(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (\text{II.8})$$

Dans l'hypothèse où l'impulsion lumineuse, onde plane infinie, excite un échantillon de dimension transversale infinie, on obtient :

$$E_R(\vec{r}, t) = \frac{1}{\epsilon_0} \theta_{kLN} \mu_{ab} e^{i\omega_{ab} t - i\vec{k} \cdot \vec{r} - \gamma_{ab}(t - t_s)} \hat{\omega}(t - t_s)$$

où  $L$  est la longueur de l'échantillon et où :

$$\hat{\omega}(t) = \int d\vec{v} n(\vec{v}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{v} t} \quad (\text{II.9})$$

Ce champ est lui-même une onde plane infinie qui se propage dans la même direction que l'impulsion excitatrice.

Si l'échantillon a une dimension transversale finie  $d$ , le champ qu'il rayonne est limité par diffraction et l'ouverture angulaire du faisceau lumineux diffusé est alors de l'ordre de  $\lambda/d$ , pourvu que le nombre de Fresnel  $d^2/\lambda L$  de l'échantillon soit très supérieur à l'unité [15]. La directivité du signal reflète son caractère cohérent. Le signal résulte de la composition des champs élémentaires rayonnés par tous les dipôles atomiques. En conséquence de la relation de phase établie entre les dipôles par l'impulsion excitatrice, l'interférence entre les différentes émissions atomiques n'est constructive que dans la direction de propagation de cette impulsion.

L'évolution temporelle du signal est exprimée par les facteurs  $\hat{\omega}(t - t_s)$  et  $\exp - \gamma_{ab}(t - t_s)$  dans l'équation A.II.9. Le facteur  $\exp - \gamma_{ab}(t - t_s)$  traduit la relaxation des cohérences optiques formées par l'impulsion excitatrice. Le facteur  $\hat{\omega}(t - t_s)$  reflète la dégradation de l'accord de phase entre les émissions des atomes de vitesses différentes. Cette fonction est centrée en  $t_s$ , sa largeur est de l'ordre de  $\Delta_D^{-1}$ . Le désaccord de phase  $\phi(t) = \vec{k} \cdot \vec{v}(t - t_s)$  entre les classes de vitesses différentes résulte du déplacement de fréquence Doppler.

Dans l'hypothèse, souvent vérifiée expérimentalement, où  $\gamma_{ab} \ll \Delta_D$  (largeur homogène très inférieure à la largeur inhomogène), le rayonnement directif de l'échantillon s'éteint au bout d'un temps de l'ordre de  $\Delta_D^{-1}$ , par interférence destructive des émissions produites par les atomes de vitesses différentes, bien avant la disparition des dipôles atomiques dans l'échantillon.

En résumé, après interaction résonnante avec une impulsion laser suffisamment brève, une vapeur émet un rayonnement suivant la direction de propagation de l'impulsion excitatrice ; l'ouverture angulaire de la lumière ainsi diffusée est limitée par diffraction ; le rayonnement s'éteint au bout d'un temps  $\Delta_D^{-1}$  par interférence destructive entre les émissions des atomes de différentes classes de vitesse ; pourvu que  $\gamma_{ab} \ll \Delta_D$ , les dipôles atomiques survivent après l'extinction de ce rayonnement ; subsiste également la relation de phase  $\phi(t) = \vec{k} \cdot \vec{v} (t - t_s)$  que le champ exciteur a établie entre eux [16].

### C - DIFFRACTION PAR UN RESEAU SPATIAL TRANSITOIRE

Dans le paragraphe précédent, nous décrivons la diffusion Rayleigh cohérente d'une impulsion lumineuse par une vapeur atomique en équilibre thermodynamique. Au moment où débute l'interaction avec le champ appliqué, tous les atomes sont dans l'état fondamental a et la densité atomique est la même en tout point de l'échantillon. Nous examinons à présent la diffusion Rayleigh sur un échantillon qu'une excitation non uniforme spatialement a préalablement écarté de l'équilibre thermodynamique. L'échantillon est éclairé à l'instant  $t_F$  par deux impulsions synchrones, de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ , accordées à résonance avec la transition a-b. La figure d'interférence de ces deux ondes apparaît comme une succession de ventres et de noeuds d'éclairement de période  $2\pi/|\vec{k}_2 - \vec{k}_1|$  dans la direction du vecteur  $\vec{K} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Le niveau excité b se trouve ainsi peuplé différemment selon la position de l'atome dans l'échantillon. C'est un véritable réseau de Bragg qui s'inscrit dans la densité spatiale de différence de population entre les niveaux a et b. La diffusion Rayleigh d'une troisième impulsion par un tel échantillon se produit non seulement vers l'avant mais aussi dans les ordres successifs de diffraction du réseau de Bragg [Fig. 2].

La formation du réseau de Bragg est analysée dans l'approximation des ondes planes et dans l'hypothèse où la figure d'interférence est produite par deux impulsions de même amplitude  $\xi_1(t)$ . On suppose, de plus, que leur polarisation est rectiligne et perpendiculaire au plan  $(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ . Le champ total résultant de la superposition des deux ondes s'écrit :

$$E_F(\vec{r}, t) = 4 \xi_1(t) \cos \frac{\vec{K}\vec{r}}{2} \cos(\omega_{ab} t - \vec{k}\vec{r})$$

La densité spectrale de puissance de ce champ est :

$$S(\omega_{ab} + \Delta, \vec{r}) = 8 \cos^2 \frac{\vec{K}\vec{r}}{2} B(\Delta) \quad (\text{II.10})$$

où  $B(\Delta) = \left| \int dt e^{i\Delta t} \xi_1(t) \right|^2$ . Nous considérons le peuplement par excitation radiative, du niveau supérieur b pour les atomes de vitesse  $\vec{v}$ , dont l'effet Doppler décale la fréquence de résonance de  $\Delta = \vec{k}\cdot\vec{v}$  par

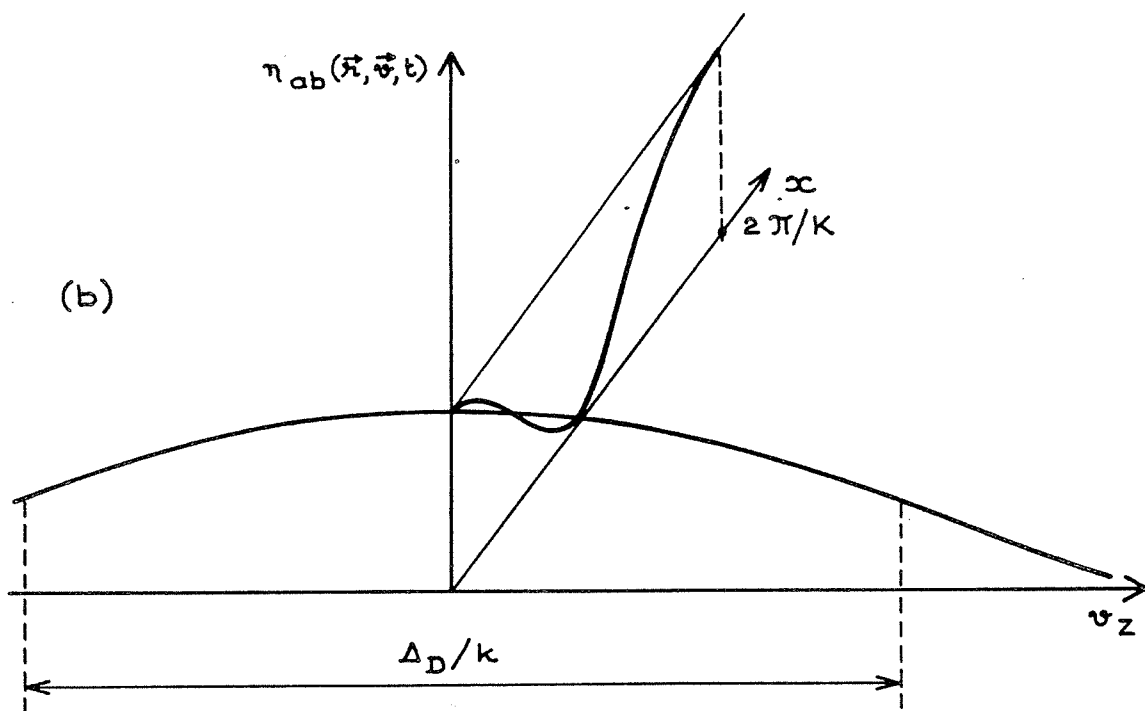
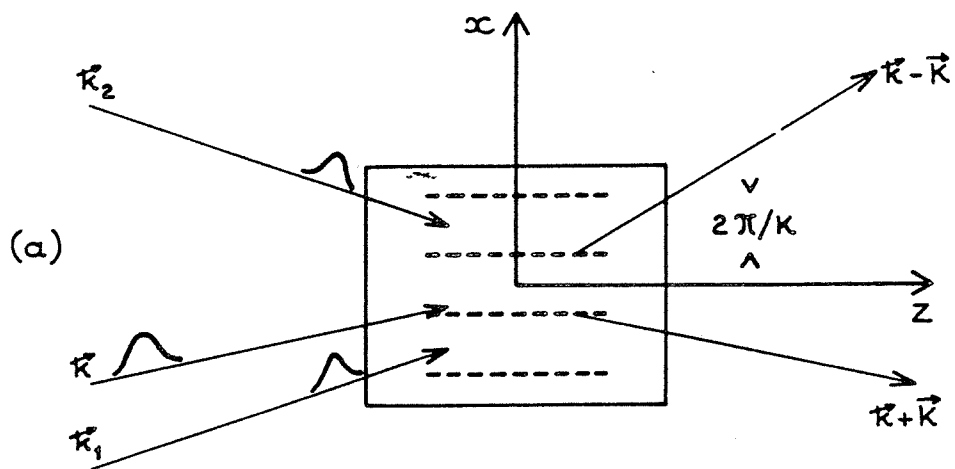


Figure 2 : Diffraction d'une impulsion sonde sur le réseau transitoire créé par deux impulsions simultanées :

- a) Réseau spatial inscrit par les impulsions de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ . Diffraction de l'impulsion de lecture de vecteur d'onde  $\vec{k}$  dans les ordres  $-1$  ( $\vec{k} - \vec{K}$ ) ou  $+1$  ( $\vec{k} + \vec{K}$ ).
- b) Différence de population des niveaux atomiques en fonction de la position transversale (dans la direction  $\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ ) et de la vitesse longitudinale (dans la direction  $\vec{k}_2 + \vec{k}_1$ ). Le réseau transitoire se manifeste par une modulation de période  $2\pi/K$  dans la direction transversale.

rapport à  $\omega_{ab}$ . Dans la limite de champ faible ( $\int dt \mu_{ab} \xi_1(t) / h \ll 1$ ), ce peuplement est proportionnel à :

$$\int d\Delta' S(\omega_{ab} + \Delta', \vec{r}) h(\omega_{ab} + \Delta - \Delta'),$$

produit de convolution du spectre de puissance par le profil homogène de la raie :

$$h(\omega_{ab} + \Delta) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + \Delta^2}$$

Dans l'hypothèse d'une impulsion assez brève pour que  $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$ , le spectre de puissance est beaucoup plus large que le profil de raie. Le produit de convolution se réduit à  $S(\omega_{ab} + \Delta, \vec{r})$  qui caractérise alors la probabilité d'excitation dans le niveau b, en fonction de la vitesse et de la position. Par ailleurs, nous supposons que  $\Delta_D \tau_L \ll 1$  (largeur inhomogène de la raie très inférieure à la largeur du spectre de puissance). Dans la région du spectre où l'impulsion est susceptible d'exciter le niveau b, la fonction  $B(\Delta)$  est alors très voisine de  $B(0)$  que nous notons B.

La forme de la fonction  $S(\omega_{ab} + \Delta, \vec{r})$  indique qu'un réseau holographique sinusoïdal s'inscrit dans la différence de population des niveaux atomiques. On peut le représenter sous la forme :

$$n_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) = \sum_{p=-1}^1 \hat{n}_{ab}(p, \vec{v}, t) e^{-ip\vec{K}\vec{r}} \quad (\text{II.11})$$

où :  $\hat{n}_{ab}(0, \vec{v}, t_F) = -Nn(\vec{v})(1 - 2\beta B)$

$$\hat{n}_{ab}(\pm 1, \vec{v}, t_F) = \beta Nn(\vec{v}) B$$

où  $\beta$  est un paramètre qui dépend de la probabilité de la transition a-b. Le réseau s'efface au cours du temps sous l'effet conjugué du mouvement de translation des atomes (diffusion) [17] et de leur relaxation interne vers leur niveau fondamental [18]. A l'instant d'observation  $t_F + \tau$ , l'effacement par diffusion reste imperceptible pourvu que  $\tau$  soit très inférieur au temps nécessaire à un atome pour franchir un pas du réseau. Cette condition peut s'écrire :

$$\Delta_D \tau (\vec{k}_1, \vec{k}_2) \ll 1 \quad (\text{II.12})$$

Dans une situation typique où  $(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \sim 10^{-2}$  rd et  $\Delta_D \sim 500$  MHz, cette condition est satisfaite si  $\tau \ll 200$  ns. Le dépeuplement du niveau excité vers le fondamental est quant à lui caractérisé par son taux  $\gamma_b$ .

A l'instant  $t_s = t_F + \tau$ , on observe la diffusion Rayleigh d'une troisième impulsion, par cet échantillon hors d'équilibre thermodynamique. Juste avant l'arrivée de l'impulsion sonde, les composantes du réseau de Bragg s'écrivent :

$$\begin{aligned} \hat{n}_{ab} (0, \vec{v}, t_s) &= - Nn(\vec{v}) (1 - 2 \beta B e^{-\gamma_b \tau}) \\ \hat{n}_{ab} (\pm 1, \vec{v}, t_s) &= Nn(\vec{v}) \beta B e^{-\gamma_b \tau} \end{aligned} \quad (\text{II.13})$$

Soit  $\vec{k}$  le vecteur d'onde de l'impulsion sonde et soit  $\theta$  son aire que nous supposons très inférieure à l'unité. La cohérence atomique induite par l'interaction s'exprime à l'aide de l'équation II.7 à condition d'y remplacer la différence de population à l'équilibre -  $Nn(\vec{v})$  par la différence de population hors d'équilibre décrite par les Eqs II.11 et II.13. On obtient :

$$\begin{aligned} \rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) &= i\theta Nn(\vec{v}) e^{i\omega_{ab}t + (i\vec{k}\vec{v} - \gamma_{ab})(t - t_s)} \\ &\times \left\{ (1 - 2\beta B e^{-\gamma_b \tau}) e^{-i\vec{k}\vec{r}} \right. \\ &\quad - \beta B e^{-\gamma_b \tau} e^{-i(\vec{k} - \vec{K})\vec{r}} \\ &\quad \left. - \beta B e^{-\gamma_b \tau} e^{-i(\vec{k} + \vec{K})\vec{r}} \right\} \end{aligned} \quad (\text{II.14})$$

La polarisation macroscopique induite dans l'échantillon s'obtient en remplaçant  $\rho_{ab}$  par l'expression II.14 dans l'équation II.1. Le champ  $E_R(\vec{r}, t)$  rayonné par cette polarisation est solution de l'équation d'onde A.II.8. On reconnaît dans le terme en  $\exp - i\vec{k}\cdot\vec{r}$  de l'Eq II.14, la source de la diffusion cohérente dans la direction  $\vec{k}$ , telle que la produit un échantillon homogène à l'équilibre. A ce terme s'ajoutent, dans l'Eq II.14, des composantes en  $\exp i(\vec{k} \pm \vec{K}) \cdot \vec{r}$  qui sont susceptibles de donner naissance à un rayonnement dans les directions  $\vec{k} \pm \vec{K}$ . Pour qu'une telle



émission soit possible, il faut que les dipôles optiques soient en tout point en phase avec le champ qu'ils rayonnent. Cette condition d'accord de phase est satisfaite par certaines directions d'incidence sur le réseau de Bragg [19]. Dans un échantillon de longueur infinie, la condition d'accord de phase est seulement vérifiée par les "directions d'incidence de Bragg", qui, dans l'ordre 1 (resp - 1) décrivent le cône d'équation  $k = | \vec{k} + \vec{K} |$  (resp  $k = | \vec{k} - \vec{K} |$ ). Dans un échantillon de longueur finie  $L$ , la condition d'accord de phase est moins sévère. Il est seulement requis que le déphasage accumulé au cours de la traversée de l'échantillon entre le champ rayonné et les dipôles qui l'engendrent soit très inférieur à l'unité. Cette condition s'écrit :

$$( | \vec{k} \pm \vec{K} | - k ) L \ll 1$$

L'évolution temporelle de ces signaux est identique à celle de la diffusion Rayleigh par un échantillon homogène à l'équilibre, décrite au paragraphe précédent.

L'amplitude du champ rayonnée dans les ordres  $\pm 1$  de diffraction par le réseau est proportionnelle à l'amplitude de la modulation spatiale qui subsiste dans la différence de population des niveaux, au bout d'un intervalle de temps  $\tau$  après sa formation par les deux premières impulsions excitatrices. L'intensité de la diffraction dans les ordres  $\pm 1$  varie donc en  $\exp - 2 \gamma_b \tau$  en fonction du paramètre ajustable  $\tau$ , ce qui permet la mesure du taux de relaxation  $\gamma_b$  [18].



**D - DIFFRACTION PAR UN RESEAU FORME PAR DEUX IMPULSIONS  
DECALEES DANS LE TEMPS - ECHO DE PHOTON STIMULE**

Dans le paragraphe précédent, deux impulsions éclairent simultanément l'échantillon et y inscrivent leur figure d'interférence sous la forme d'un réseau spatial dans la densité de population des niveaux atomiques. Nous supposons maintenant que les deux impulsions sont séparées dans le temps par un intervalle  $t_{12}$  supérieur à leur durée  $\tau_L$ . Leur figure d'interférence ne se forme donc plus dans l'échantillon. Cependant, lorsque les atomes conservent la mémoire de phase du champ exciteur, la probabilité d'excitation dans le niveau b reste proportionnelle à la densité spectrale de puissance et un réseau de Bragg s'inscrit toujours dans la densité spatiale de population des niveaux atomiques [Fig. 3a]. Nous précisons les caractéristiques temporelles de la diffraction par ce réseau, telles qu'elles résultent de ses propriétés spectrales.

Le champ composite formé par les deux impulsions décalées dans le temps s'écrit :

$$E_F(\vec{r}, t, t_{12}) = \xi_1(t) \exp i(\omega_{ab} t - \vec{k}_1 \vec{r}) + \xi_1(t-t_{12}) \exp i(\omega_{ab} t - \vec{k}_2 \vec{r}) + C.C.$$

où  $t_{12}$  est l'intervalle qui sépare les deux impulsions. La densité spectrale de puissance de ce champ est donc :

$$\begin{aligned} S(\omega_{ab} + \Delta, \vec{r}, t_{12}) &= \int dt \int dt' E_F(\vec{r}, t, t_{12}) E_F(\vec{r}, t', t_{12}) e^{-i(\omega_{ab} + \Delta)(t-t')} \\ &= 8 \cos^2 \left( \frac{\Delta t_{12} + \vec{K} \cdot \vec{r}}{2} \right) B \end{aligned} \quad (II.15)$$

où B est défini dans le paragraphe précédent. Le peuplement du niveau excité b dans les atomes de vitesse  $\vec{v}$  est proportionnel au produit de convolution :

$$\begin{aligned} &\int d\Delta' S(\omega_{ab} + \Delta', \vec{r}, t_{12}) h(\vec{k} \vec{v} - \Delta') \\ &= 4 \left[ 1 + \cos(\vec{k} \vec{v} t_{12} + \vec{K} \cdot \vec{r}) e^{-\gamma_{ab} |t_{12}|} \right] B \end{aligned} \quad (II.16)$$

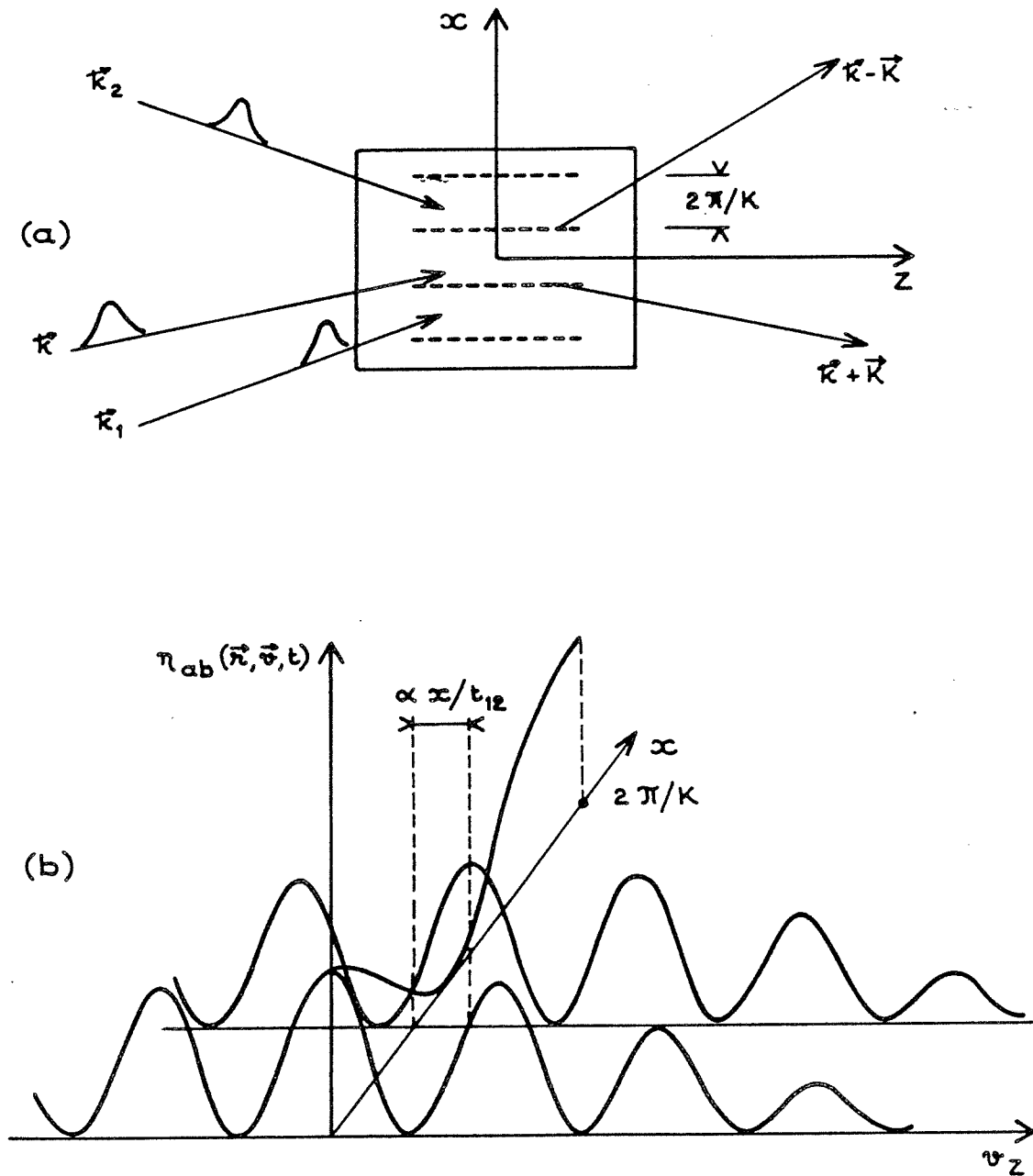


Figure 3 : Diffraction de l'impulsion de lecture par le réseau transitoire créé par deux impulsions d'inscription décalées de  $t_{12}$  :

- Notations identiques à celles de la Figure 2.
- Différence de population des niveaux atomiques en fonction de la coordonnée de position transversale et de la composante de vitesse longitudinale. Une modulation est inscrite dans la distribution de vitesse longitudinale. La modulation à la distance  $x$  de l'origine est décalée de  $\alpha x/t_{12}$ , où  $\alpha = (\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ , par rapport à la modulation inscrite en  $x = 0$ .

Nous considérons d'abord la situation où  $\gamma_{ab} |t_{12}| \ll 1$ . Alors, un réseau spatial se forme comme précédemment dans la densité de la différence de population des niveaux atomiques. Ce réseau s'inscrit alors même que, dès que  $t_{12} > \tau_L$ , la figure d'interférence des deux ondes ne se forme plus dans l'échantillon. Par ailleurs, à la différence du réseau imprimé par deux ondes simultanées, la structure inscrite par deux impulsions séparées dans le temps se compose en fait d'un ensemble de réseaux associés aux différentes classes de vitesse et décalés les uns par rapport aux autres [Fig. 3b]. A l'origine des coordonnées spatiales, le peuplement du niveau b dans les atomes de vitesse  $\vec{v}$  est, en effet, proportionnel à  $(1 + \cos \vec{k} \vec{v} t_{12}) B$ . Le réseau associé à la classe de vitesse  $\vec{v}'$  est décalé de  $\vec{k} (\vec{v} - \vec{v}') t_{12}/K$  dans la direction de  $\vec{K}$  par rapport au réseau associé à la classe de vitesse  $\vec{v}$ . Il s'ensuit qu'un facteur de phase,  $\exp \pm i \vec{k} \vec{v} t_{12}$ , distingue les premières composantes de Fourier du présent réseau de Bragg, de celles du réseau produit par deux impulsions synchrones (II.11). On obtient, en effet, dans le cas présent :

$$\hat{n}_{ab} (\pm 1, \vec{v}, t_F) = \beta Nn(\vec{v}) B e^{\pm i \vec{k} \vec{v} t_{12}} \quad (\text{II.17})$$

A l'instant  $t_p$ , une impulsion faible ( $\theta \ll 1$ ) de vecteur d'onde  $\vec{k}$  interagit avec l'échantillon. Juste avant l'interaction, les composantes de Fourier du réseau de population s'écrivent :

$$\begin{aligned} \hat{n}_{ab} (0, \vec{v}, t_p) &= -Nn(\vec{v}) (1 - 2\beta B \exp - \gamma_b \tau) \\ \hat{n}_{ab} (\pm 1, \vec{v}, t_p) &= \beta Nn(\vec{v}) B e^{-\gamma_b \tau} e^{\pm i \vec{k} \vec{v} t_{12}} \end{aligned} \quad (\text{II.18})$$

La cohérence atomique induite par l'impulsion sonde est obtenue à l'aide de l'Eq. II.7, où la différence de population à l'équilibre  $-Nn(\vec{v})$  est remplacée par la structure hors d'équilibre exprimée à l'aide des Eqs II.11 et II.18. On obtient :

$$\begin{aligned} \rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) &= i\theta Nn(\vec{v}) e^{i\omega_{ab} t + (i\vec{k} \vec{v} - \gamma_{ab})(t - t_s)} \\ &\left\{ (1 - 2\beta B e^{-\gamma_b \tau}) e^{-i \vec{k} \vec{r}} \right. \\ &- \beta B e^{-\gamma_b \tau} e^{-i(\vec{k} - \vec{K}) \vec{r} + i \vec{k} \vec{v} t_{12}} \\ &\left. - \beta B e^{-\gamma_b \tau} e^{-i(\vec{k} + \vec{K}) \vec{r} - i \vec{k} \vec{v} t_{12}} \right\} \end{aligned} \quad (\text{II.19})$$

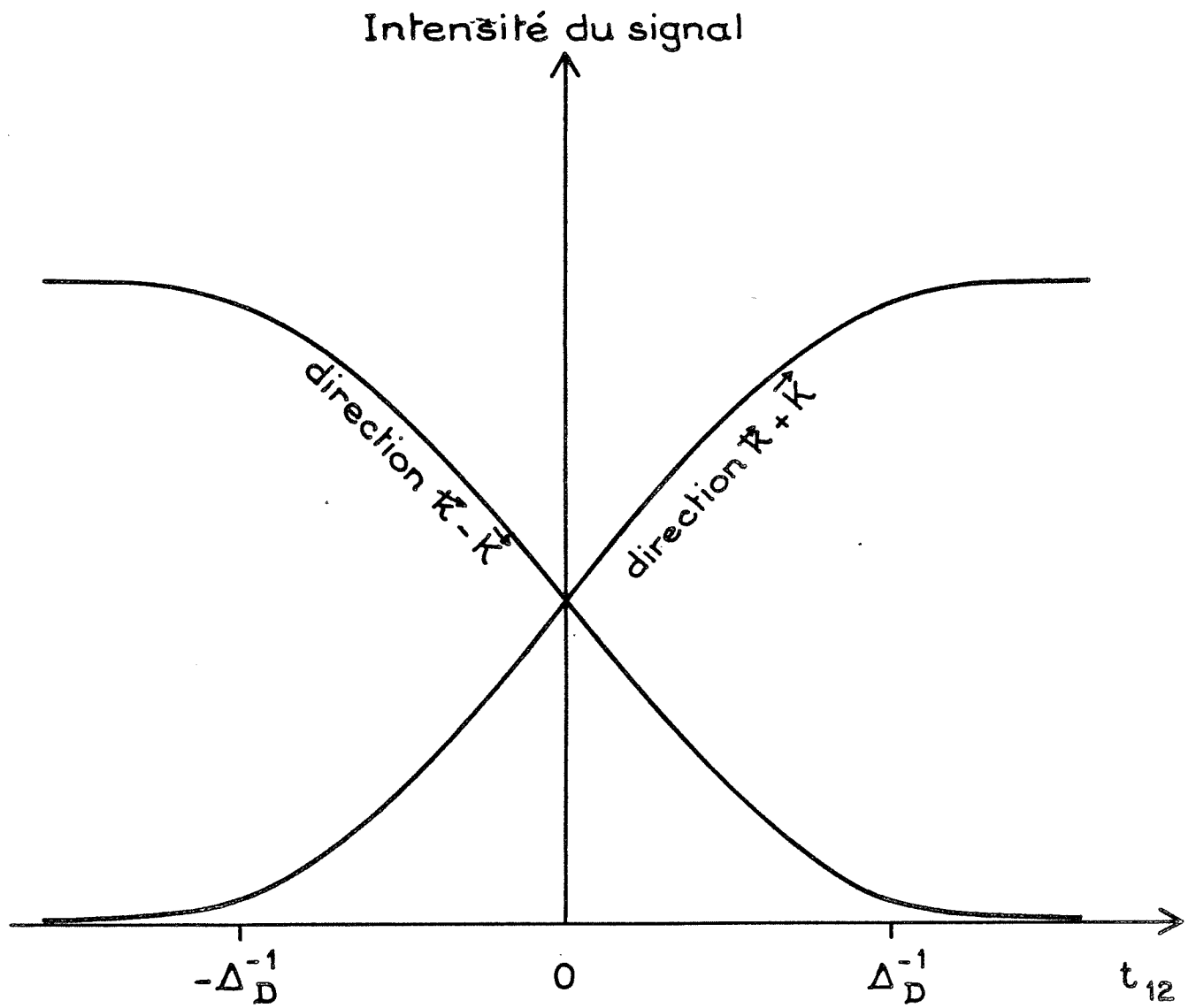


Figure 4 : Variation du signal de mélange à quatre ondes en régime de champ faible en fonction du retard entre les deux premières impulsions.

Les impulsions d'inscription et de lecture sont limitées par transformée de Fourier.  $\Delta_D$  est la largeur inhomogène de la raie.

Le champ rayonné dans la direction  $\vec{k} + \vec{K}$  (resp  $\vec{k} - \vec{K}$ ) par la polarisation macroscopique associée à cette cohérence est obtenu à l'aide de l'équation d'onde II.8, où on ne retient dans le terme source que la composante de la polarisation macroscopique proportionnelle à  $\exp-i(\vec{k} + \vec{K})$  (resp.  $\exp - i(\vec{k} - \vec{K})$ ). Dans l'hypothèse des ondes planes et d'un échantillon à dimension transversale infinie, on obtient alors :

$$E_{\vec{K}}(\vec{r}, t)_{\vec{k} \pm \vec{K}} = \frac{1}{\epsilon_0} \theta k L N \mu_{ab} \beta B$$

$$\times \exp [ i \omega_{ab} t - i (\vec{k} \pm \vec{K}) \vec{r} - \gamma_{ab} (t - t_s) - \gamma_b \tau ]$$

$$\times \hat{\omega} (t - t_p \mp t_{12}), t > t_p \quad (\text{II.20})$$

A la différence du signal de diffusion Rayleigh sur un échantillon homogène à l'équilibre (§ II.B) ou sur un réseau transitoire gravé par deux impulsions simultanées (§ II.C), le signal décrit par l'Eq. II.20 est décalé dans le temps par rapport à l'impulsion sonde. En effet, la fonction  $\hat{\omega}(t - t_s \mp t_{12})$  indique que le signal atteint son maximum en  $t = t_s + t_{12}$  (avec  $t > t_s$ ) dans la direction  $\vec{k} + \vec{K}$  et en  $t = t_s - t_{12}$  (avec  $t > t_s$ ) dans la direction  $\vec{k} - \vec{K}$ . La durée du signal, fixée par la largeur de la fonction  $\hat{\omega}(t)$ , est de l'ordre de l'inverse de la largeur Doppler, comme dans les processus envisagés précédemment. Dès que  $|\Delta_D t_{12}| > 1$  et lorsque  $t_{12}$  est positif, l'émission du signal dans la direction  $\vec{k} - \vec{K}$  devient impossible. Elle devrait, en effet, se produire sur un intervalle  $\Delta_D^{-1}$  autour de  $t = t_s - t_{12}$ , ce qu'interdit la condition  $t > t_s$ , expression du lien de causalité entre l'impulsion sonde et le signal qu'elle induit. De même, lorsque  $t_{12}$  est négatif, l'émission est interdite dans la direction  $\vec{k} + \vec{K}$ . En d'autres termes, la direction d'émission du signal bascule de  $\vec{k} - \vec{K}$  à  $\vec{k} + \vec{K}$ , lorsque les deux impulsions excitatrices échangent leur ordre d'arrivée dans l'échantillon [Fig. 4]. Le basculement s'accomplit sur un intervalle de variation de  $t_{12}$  de l'ordre de l'inverse de la largeur Doppler, de part et d'autre de la position  $t_{12} = 0$  d'excitation synchrone.

Le processus décrit dans ce paragraphe est connu sous le nom d'écho de photon stimulé [20, 21].

Nous avons examiné la formation du signal dans la limite où  $\gamma_{ab} t_{12} \ll 1$ . Nous avons observé que cette condition assure l'inscription du réseau de Bragg dans la population des niveaux atomiques, comme si les deux impulsions impliquées dans la formation du réseau imprimaient leur figure d'interférence dans l'échantillon. C'est la mémoire de phase atomique qui rend possible la formation du réseau et la condition  $\gamma_{ab} t_{12} \ll 1$  exprime la conservation de cette mémoire sur un intervalle de temps au moins égal à  $t_{12}$ . Lorsque cette condition n'est plus satisfaite, le réseau décroît en  $\exp - \gamma_{ab} t_{12}$  (Cf. Eq. II.16). A la représentation spectrale adoptée jusqu'ici pour décrire la formation du réseau de Bragg, il est alors préférable de substituer une image temporelle qui exprime plus clairement le processus de relaxation associé au facteur  $\exp - \gamma_{ab} t_{12}$ .

La vapeur atomique initialement à l'équilibre thermodynamique est éclairée à l'instant  $t_1$  et à l'instant  $t_2$  par deux impulsions de vecteur d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ . L'intervalle  $t_{12} = t_2 - t_1$  est supposé positif et supérieur à  $\tau_L$ . L'amplitude de la première impulsion est notée  $\xi_1(t)$ . La deuxième impulsion est décrite par la même amplitude, affectée d'un retard  $t_{12}$ . On suppose que l'aire  $\theta_1 = \int dt \xi_1(k) \mu_{ab}/h$  des impulsions est faible. Alors, en accord avec l'Eq. II.7, la première impulsion construit, dans l'échantillon initialement à l'équilibre, la densité de cohérence :

$$\rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) = + i\theta_1 Nn(\vec{v}) e^{i\omega_{ab}t - i\vec{k}_1 \cdot \vec{r} + (i\vec{k}_1 \cdot \vec{v} - \gamma_{ab})(t - t_1)} \quad (\text{II.21})$$

Cette cohérence atomique évolue librement, jusqu'à l'instant  $t_2$ . Elle s'écrit alors d'après l'Eq. II.21 :

$$\rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t_2) = \rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t_1) \exp(i\omega_{ab} + i\vec{k}_1 \cdot \vec{v} - \gamma_{ab}) t_{12} \quad (\text{II.22})$$

L'interaction avec la deuxième impulsion construit, à partir de cette cohérence, une contribution  $\delta n(\vec{r}, \vec{v}, t)$  à la différence de population des niveaux atomiques. Par résolution de l'Eq. II.4 à l'ordre le plus bas des perturbations, on obtient :

$$\begin{aligned} \delta n(\vec{r}, \vec{v}, t_2) &= 2 i \theta_1 \left[ \rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t_2) e^{+i\vec{k}_2 \cdot \vec{r} - i\omega_{ab}t_2} \right. \\ &\quad \left. - \rho_{ba}(\vec{r}, \vec{v}, t_2) e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{r} + i\omega_{ab}t_2} \right] \quad (\text{II.23}) \\ &= -4 \theta_1^2 Nn(\vec{v}) \cos(\vec{K} \cdot \vec{r} + \vec{k}_1 \cdot \vec{v} t_{12}) e^{-\gamma_{ab} t_{12}} \end{aligned}$$



Ainsi, le réseau de Bragg inscrit dans la population des niveaux atomiques reflète un processus en trois étapes successives :

- à l'instant  $t_1$  la première impulsion forme une densité de cohérence atomique,
- pendant l'intervalle qui sépare les deux impulsions lumineuses, les cohérences atomiques associées aux différentes classes de vitesses se déphasent par effet Doppler ainsi qu'en témoigne le facteur  $\exp i \vec{k}_1 \vec{v} t_{12}$  dans l'Eq. II.22. Par ailleurs, les cohérences disparaissent avec un taux de relaxation  $\gamma_{ab}$  ainsi que l'indique le facteur  $\exp - \gamma_{ab} t_{12}$ ,
- à l'instant  $t_2$  la deuxième impulsion construit, à partir de ces cohérences, une perturbation dans la population des niveaux atomiques, qui, pour chaque classe de vitesse, constitue un réseau de Bragg. Le déphasage Doppler entre les classes de vitesse, accumulé pendant l'intervalle  $t_{12}$ , se manifeste par un décalage spatial entre les réseaux de Bragg associés aux différentes classes de vitesse. On peut aussi considérer qu'en chaque point de l'espace des positions, un réseau de Bragg de vecteur  $\vec{k} t_{12}$  s'inscrit dans l'espace des vitesses.

La diffusion Rayleigh d'une troisième impulsion sur l'échantillon ainsi préparé produit un signal d'écho de photon, stimulé dans les directions  $\vec{k} + \vec{K}$  (si  $t_{12} > \Delta_D^{-1}$ ) où  $\vec{k} - \vec{K}$  (si  $t_{12} < - \Delta_D^{-1}$ ). Le champ qui décrit le signal diffère de l'Eq. II.20 par un facteur  $\exp - \gamma_{ab} t_{12}$ . La mesure de l'intensité du signal en fonction de  $t_{12}$  permet de déterminer le taux de relaxation  $\gamma_{ab}$  [21].

Ce chapitre est sous-tendu par l'hypothèse que la durée des impulsions est beaucoup plus courte que tous les temps caractéristiques de la transition atomique considérée. Comme  $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$ , les intervalles de temps entre impulsions laser, définis à  $\tau_L$  près, sont bien déterminés à l'échelle de l'évolution interne du système atomique. Par ailleurs, parce que  $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$  l'inscription d'un réseau de Bragg, soumise à la condition  $\gamma_{ab} |t_{12}| \lesssim 1$ , peut être assurée par des impulsions que sépare un intervalle  $t_{12}$  très supérieur à  $\tau_L$ . Enfin, comme  $\Delta_D \tau_L \ll 1$ , chaque impulsion produit une excitation cohérente de l'échantillon sur l'ensemble de

la largeur Doppler. Par excitation cohérente, on entend une excitation qui établit une relation de phase  $\phi(t) = k(v_z - v_z')(t - t_F)$  pour n'importe quel couple d'atomes de vitesse  $v_z$  et  $v_z'$ , à partir de l'instant  $t_F$  d'excitation. Ce caractère cohérent se manifeste aussi, dans le cas d'une excitation à deux impulsions décalées de  $t_{12}$ , par l'inscription d'une structure sinusoïdale de période  $2\pi/k t_{12}$  sur toute la largeur de la distribution de vitesse atomique (Cf. Eq. II.17). L'extension de l'excitation cohérente à la largeur Doppler tout entière fixe à  $\Delta_D^{-1}$  la durée du signal de diffusion Rayleigh. Pour la même raison, dans le cas de la diffusion par un réseau de Bragg créé par deux impulsions décalées dans le temps, c'est sur un intervalle  $\Delta_D^{-1}$  de variation de l'écart  $t_{12}$  entre impulsions, que la direction d'émission du signal bascule de  $\vec{k} - \vec{K}$  à  $\vec{k} + \vec{K}$ . Une impulsion limitée par transformée de Fourier de durée  $\tau_L \geq \Delta_D^{-1}$  exciterait les atomes sur un domaine de vitesse de largeur  $2\pi/k \tau_L$ , plus étroit que la distribution de vitesse d'équilibre. En conséquence, la durée du signal de diffusion Rayleigh atteindrait la valeur  $\tau_L$  et la direction d'émission du signal d'écho de photon stimulé basculerait de  $\vec{k} - \vec{K}$  en  $\vec{k} + \vec{K}$  sur un intervalle  $\tau_L$  de variation de l'écart  $t_{12}$  entre impulsions. Lorsque la durée de vie  $\gamma_{ab}^{-1}$  des cohérences atomiques est inférieure à la durée  $\tau_L$  des impulsions, un signal d'écho stimulé subsiste aussi longtemps que les deux premières impulsions excitatrices sont simultanément présentes dans l'échantillon. Le signal s'éteint alors sur un intervalle de variation  $\tau_L$  de la séparation  $t_{12}$  entre ces impulsions. De la variation du signal en fonction de  $t_{12}$  on ne peut donc pas déduire la valeur de  $\gamma_{ab}$  mais seulement certaines caractéristiques temporelles des impulsions [22]. Un laser multimode ou une source d'émission spontanée amplifiée peuvent émettre des impulsions lumineuses dont la largeur spectrale  $\Delta_L$  est très supérieure à l'inverse de la durée  $\tau_L^{-1}$ . Il est alors possible de satisfaire simultanément les conditions :

$$\Delta_L \gg \Delta_D, \gamma_{ab}$$

$$\gamma_{ab}, \Delta_D \gg \tau_L^{-1}$$

Le chapitre suivant est consacré à la formation d'un écho de photon stimulé dans de telles conditions.

## CHAPITRE III

ECHOS DE PHOTON STIMULES EN LUMIERE INCOHERENTE  
LIMITE DES CHAMPS FAIBLES

## A - INTRODUCTION

Nous avons remarqué dans le chapitre précédent que la résolution temporelle d'une expérience d'écho de photon stimulé est limitée par la durée  $\tau_L$  des impulsions excitatrices, lorsque ces impulsions sont telles que  $\Delta_L \tau_L \sim 1$ . A cette limitation dans le domaine temporel répond, dans le domaine spectral, la propriété que l'excitation cohérente couvre un intervalle de fréquences de largeur  $\tau_L^{-1}$ . En d'autres termes, les classes de vitesse reliées au bout d'un temps  $\tau$  après l'excitation par la relation de phase

$$\phi(t) = k (v_z - v_z') \tau \quad (\text{III.1})$$

sont au plus distantes de  $2 \pi/k \tau_L$ . Nous étudions dans le présent chapitre les échos de photons stimulés produits par des impulsions de grande largeur spectrale ( $\Delta_L \tau_L \gg 1$ ) telles que peuvent en émettre des lasers multimodes ou des sources d'émission spontanée amplifiée. La largeur spectrale  $\Delta_L$  s'identifie à l'inverse du temps d'autocorrélation de la lumière,  $\tau_c$ . Une impulsion de grande largeur spectrale satisfait donc la relation :

$$\tau_c \ll \tau_L \quad (\text{III.2})$$

Lorsque les impulsions qui composent la séquence excitatrice sont toutes produites par des sources distinctes, l'intervalle  $t_{12}$  reste déterminé à  $\tau_L$  près et les classes de vitesse reliées par la relation de phase III.1 sont au plus distantes de  $2 \pi/k \tau_L$ .

Considérons maintenant le cas où les deux premières impulsions sont formées par dédoublement, retard différentiel puis recombinaison, à partir d'un seul faisceau initial de lumière incohérente dont les paramètres

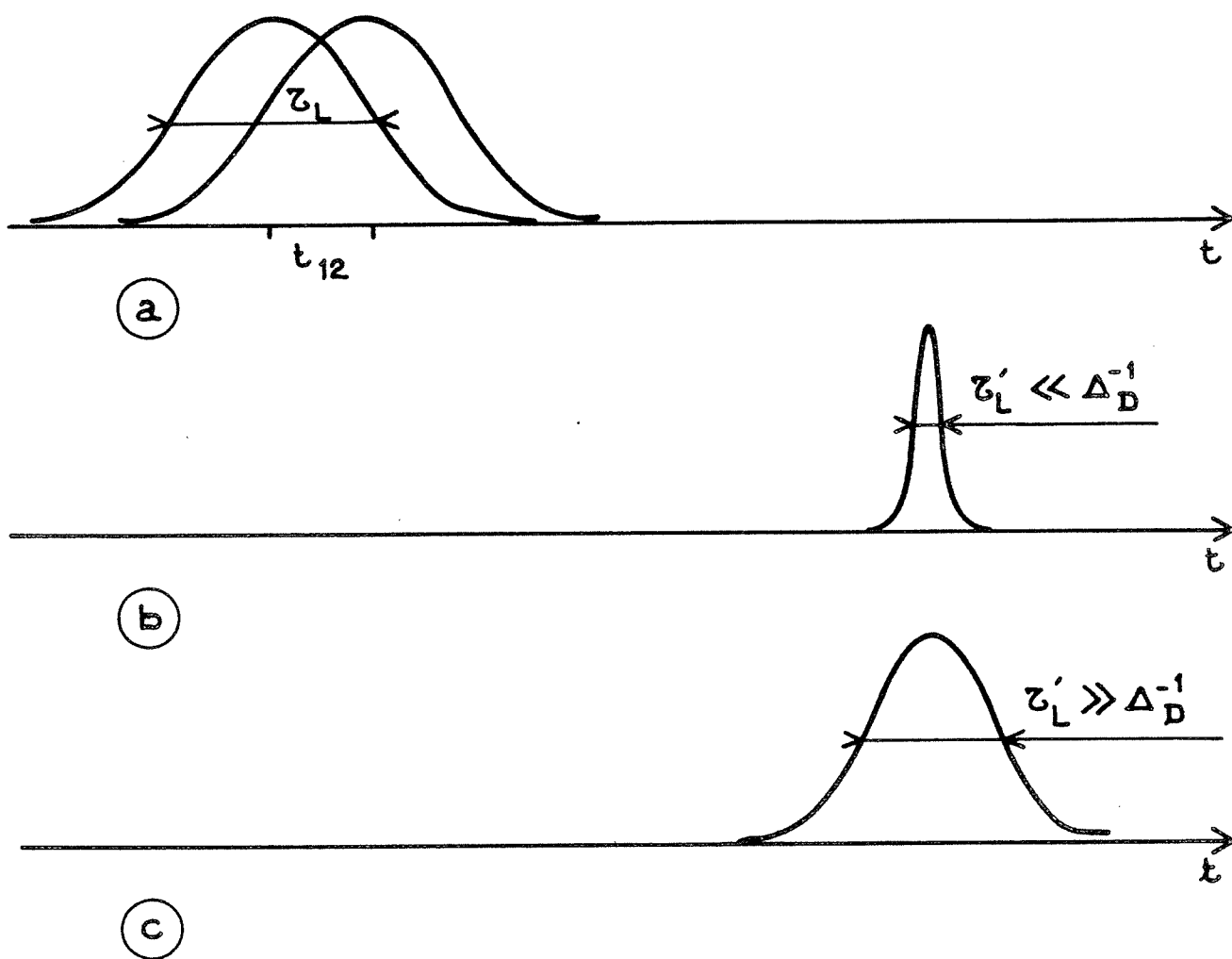


Figure 5 : Inscription et lecture du réseau transitoire créé par des impulsions large bande.

- a) Inscription par deux impulsions large bande corrélées (Chap. III § B).
  - b) Lecture par une impulsion limitée par transformée de Fourier (Chap. III § C-1).
  - c) Lecture par une impulsion large bande (Chap. III § C-2).
- $\Delta_D$  est l'élargissement inhomogène de la raie.

$\tau_c$  et  $\tau_L$  vérifient la relation III.2. Il a été montré récemment que le temps d'évolution libre d'une cohérence optique entre les interactions avec ces deux impulsions peut être défini à  $\tau_c$  près [5, 6] et qu'un domaine spectral de largeur  $\tau_c^{-1}$  très supérieure à  $\tau_L^{-1}$  peut être excité de façon cohérente [23, 24]. Ces propriétés suggèrent d'établir une analogie entre l'excitation produite par un tel couple d'impulsions et celle réalisée par deux impulsions brèves de durée  $\tau_c$ .

Ce chapitre propose des images qualitatives simples pour comprendre cette analogie et préciser les propriétés spécifiques de ce processus d'excitation. Cette analyse est développée dans la limite des champs faibles que nous caractériserons plus précisément au Chapitre IV. Nous examinons d'abord la formation d'un réseau spatial de population par deux impulsions corrélées dont la durée  $\tau_L$  et le temps d'autocorrélation  $\tau_c$  vérifient la relation :

$$\Delta_D \tau_c \ll 1 \ll \Delta_D \tau_L \quad (\text{III.3})$$

Les impulsions se chevauchent dans le temps [Fig. 5a]. Plus précisément leur décalage temporel  $t_{12}$  est supposé très court par rapport à leur durée  $\tau_L$ . Par ailleurs, le taux de relaxation  $\gamma_{ab}$  est beaucoup plus petit que la largeur Doppler  $\Delta_D$ . Nous décrivons la séquence excitatrice comme la combinaison d'un couple d'impulsions de durée  $\tau_c$  et de  $\tau_L/\tau_c$  couples d'impulsions de durée  $\tau_L$ , toutes limitées par transformée de Fourier [25]. L'analyse développée dans le Chapitre II de ce mémoire est alors appliquée au calcul des réseaux élémentaires que ces différents couples inscrivent dans l'échantillon. Nous examinons ensuite la lecture des réseaux formés. L'utilisation, pour la lecture, d'une impulsion très brève limitée par transformée de Fourier [Fig. 5b], puis celle d'une impulsion longue de lumière incohérente [Fig. 5c], sont successivement envisagées. Nous présentons enfin, quelques exemples expérimentaux où la résolution temporelle autorisée par l'excitation à deux impulsions corrélées est appliquée à la mesure de durées de vie très courtes et à l'excitation cohérente sur de larges intervalles spectraux.

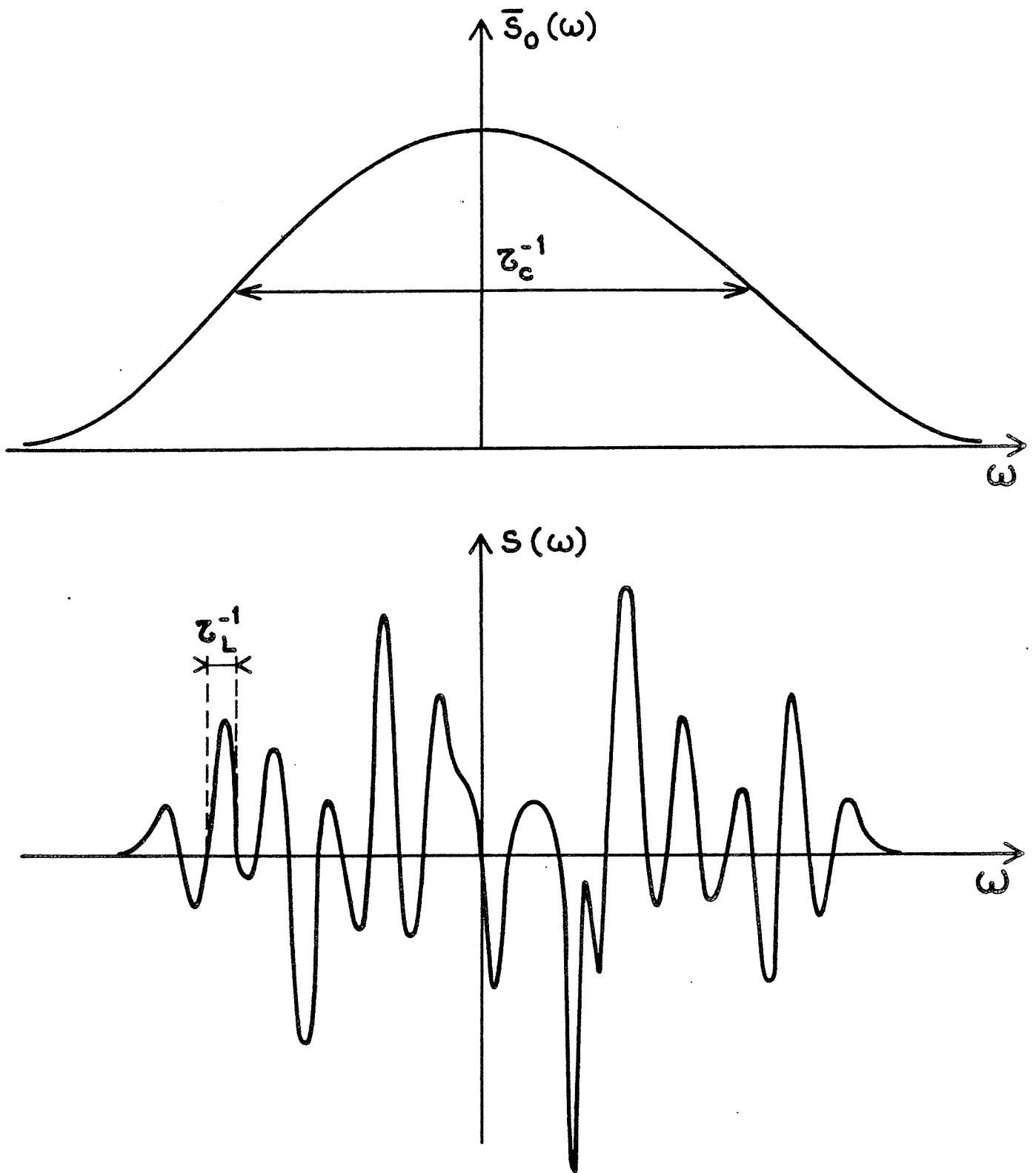


Figure 6 : Spectre de puissance  $S(\omega)$  d'une impulsion de largeur spectrale  $\tau_c^{-1}$  et de durée  $\tau_L$  telles que  $\tau_c \ll \tau_L$ . La valeur moyenne de  $S(\omega)$  est représentée par  $\bar{S}_0(\omega)$ . Les fluctuations sont représentées par  $s(\omega) = S(\omega) - \bar{S}_0(\omega)$ .

## B - FORMATION D'UN RESEAU DE POPULATION

### 1 - SPECTRE DE PUISSANCE DE DEUX IMPULSIONS CORRELEES

La vapeur atomique est excitée à résonance par une séquence de deux impulsions de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ , obtenues par dédoublement d'une seule impulsion de lumière incohérente, qui remplit la condition (III.3). Les deux impulsions ne diffèrent que par leurs directions de propagation et le retard différentiel  $t_{12}$ . Elles possèdent la même densité spectrale de puissance  $S_0(\omega)$ .

La moyenne de  $S_0(\omega)$  sur un grand nombre de tirs laser est désignée par  $\overline{S_0}(\omega)$ . La fonction  $\overline{S_0}(\omega)$  est une fonction régulière de largeur  $\tau_c^{-1}$ , qui, d'après l'hypothèse  $\Delta_D \tau_c \ll 1$ , est à peu près constante sur un domaine de largeur  $\Delta_D^{-1}$ . Le spectre  $S_0(\omega)$  s'exprime sous la forme :

$$S_0(\omega) = \overline{S_0}(\omega) + s(\omega) \quad (\text{III.4})$$

où  $s(\omega)$  est une fonction rapidement variable de  $\omega$  qui reflète le caractère incohérent de l'impulsion [Fig. 6]. La largeur de cette fonction est  $\tau_c^{-1}$  mais son intervalle caractéristique de variation est  $\tau_L^{-1}$ . Par définition, la valeur moyenne de  $s(\omega)$  sur un grand nombre de tirs laser, désignée par  $\overline{s(\omega)}$ , est nulle. En revanche,  $\overline{s^2(\omega)}$  et  $\overline{S_0^2(\omega)}$  sont du même ordre de grandeur. En termes statistiques, la quantité  $\tau_L^{-1}$  apparaît comme l'intervalle d'autocorrélation de  $s(\omega)$ , défini comme la largeur de la fonction  $\int d\omega s(\omega) s(\omega + \Omega)$  [26].

La fonction  $s(\omega)$  peut se décomposer sous la forme :

$$s(\omega) = \sum_p s_p(\omega) \quad (\text{III.5})$$

où la fonction  $s_p(\omega)$ , définie par :

$$s_p(\omega) = \begin{cases} s(\omega) & \text{si } \omega_{ab} + p \tau_L^{-1} < \omega < \omega_{ab} + (p+1) \tau_L^{-1} \\ 0 & \text{si } \omega < \omega_{ab} + p \tau_L^{-1} \text{ ou si } \omega > \omega_{ab} + (p+1) \tau_L^{-1} \end{cases} \quad (\text{III.6})$$

possède des caractéristiques analogues au spectre de puissance d'une impulsion de durée  $\tau_L$ , limitée par transformée de Fourier et de fréquence centrale  $\omega_{ab} + (p + \frac{1}{2}) \tau_L^{-1}$ .

En résumé, le spectre  $S_0(\omega)$  est analysé comme la composition du spectre d'une impulsion de durée  $\tau_c$  et des spectres de  $\tau_L/\tau_c$  impulsions de durée  $\tau_L$ , toutes limitées par transformée de Fourier et sans corrélation mutuelle.

L'excitation composite formée par les deux impulsions corrélées a pour spectre de puissance :

$$S(\omega_{ab} + \Delta, \vec{r}) = S_0(\omega_{ab} + \Delta) (1 + \cos(\Delta t_{12} + \vec{K}\vec{r})) \quad (\text{III.7})$$

où  $\vec{K} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ .

## 2 - EXCITATION SANS RELAXATION : $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$

Le peuplement du niveau supérieur de la transition est proportionnel au produit de convolution du spectre de puissance par le profil homogène de la raie atomique (Cf. Chapitre II § c). Lorsque  $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$ , l'intervalle caractéristique de variation de  $S_0(\omega)$ ,  $\tau_L^{-1}$ , est beaucoup plus grand que la largeur  $\gamma_{ab}$  du profil homogène de la raie. Le produit de convolution ci-dessus mentionné coïncide alors avec le spectre de puissance. Le peuplement du niveau supérieur est proportionnel à  $S(\omega_{ab} + \Delta, \vec{r})$ .

Le réseau spatial inscrit dans la différence de population des niveaux atomiques est analysé en série de Fourier. Le coefficient d'ordre 1 de la série s'écrit :

$$\hat{n}_{ab}(1, \vec{v}) \propto n(\vec{v}) S_0(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{v}} t_{12} \quad (\text{III.8})$$

La décomposition du spectre  $S_0(\omega)$  (Cf. Eq. III.4) suggère de distinguer dans le réseau :

- un terme cohérent, dont le coefficient de Fourier d'ordre 1 est :

$$\hat{n}_c(1, \vec{v}) \propto \bar{S}_0 n(\vec{v}) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{v}} t_{12} \quad (\text{III.9})$$



La variation de ce terme en fonction de  $\vec{v}$  est identique à celle d'un réseau formé par deux impulsions brèves, limitées par transformée de Fourier, de durée  $\tau_c$ . L'existence de ce terme est liée à la corrélation entre les impulsions excitatrices,

- un terme incohérent, dont le coefficient de Fourier d'ordre 1 est :

$$\hat{n}_{in}(1, \vec{v}) \propto s(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) n(\vec{v}) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{v}} t_{12} \quad (\text{III.10})$$

Le réseau de Bragg formé par deux impulsions non corrélées entre elles se réduit à un terme de ce type. Le développement proposé par l'équation III.5 permet d'écrire le réseau incohérent sous la forme :

$$\hat{n}_{in}(1, \vec{v}) = \sum_p \hat{n}_p(1, \vec{v}) \quad (\text{III.11})$$

$$\text{où } \hat{n}_p(1, \vec{v}) \propto s_p(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) n(\vec{v}) e^{-i\Delta_p t_{12}} \quad (\text{III.12})$$

et où  $\Delta_p = p \tau_L^{-1}$ . La variation de  $\hat{n}_p(1, \vec{v})$  en fonction de  $\vec{v}$  est identique à celle d'un réseau formé par deux impulsions de durée  $\tau_L$ , limitées par transformée de Fourier. Le réseau incohérent est un assemblage de ces contributions spectrales élémentaires, juxtaposées sur toute la largeur  $\Delta_D$  du domaine d'excitation de l'échantillon. Chaque élément  $\hat{n}_p(1, \vec{v})$  présente les mêmes propriétés que le réseau cohérent  $\hat{n}_c(1, \vec{v})$ , à la largeur près du domaine d'excitation cohérente ( $\tau_L^{-1}$  pour  $\hat{n}_p(1, \vec{v})$ ,  $\tau_c^{-1}$  pour  $\hat{n}_c(1, \vec{v})$ ).

En résumé, le coefficient de Fourier d'ordre 1 du réseau spatial inscrit dans l'échantillon s'écrit :

$$\hat{n}_{ab}(1, \vec{v}) = \hat{n}_c(1, \vec{v}) + \sum_p \hat{n}_p(1, \vec{v}) \quad (\text{III.13})$$

## 3 - EXCITATION EN PRESENCE D'UNE FORTE RELAXATION :

$$\gamma_{ab} \tau_L \gg 1$$

Parce que le profil homogène de la raie varie plus doucement que le spectre de puissance, le produit de convolution de ces deux fonctions ne se simplifie pas comme dans le paragraphe précédent. Le coefficient de Fourier d'ordre 1 du réseau spatial inscrit dans la population des niveaux atomiques s'écrit donc :

$$\hat{n}_{ab}(1, \vec{v}) \propto n(\vec{v}) \left[ S_0(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{v} t_{12}} \otimes \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + (\vec{k} \cdot \vec{v})^2} \right] \quad (\text{III.14})$$

Le spectre de puissance  $S_0(\omega)$  est la somme des deux termes  $\bar{S}_0(\omega)$  et  $s(\omega)$ . L'intervalle caractéristique de variation de  $\bar{S}_0(\omega)$ ,  $\tau_c^{-1}$ , est beaucoup plus grand que  $\gamma_{ab}$ . Il s'ensuit que :

$$\bar{S}_0(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{v} t_{12}} \otimes \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + (\vec{k} \cdot \vec{v})^2} \simeq \bar{S}_0(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{v} t_{12}} e^{-\gamma_{ab} |t_{12}|} \quad (\text{III.15})$$

Ainsi, la composante cohérente du réseau de Bragg, construite à partir du spectre de puissance moyen de l'excitation  $\bar{S}_0(\omega)$ , est affectée d'un facteur de relaxation  $\exp - \gamma_{ab} |t_{12}|$  qui confirme sa similitude avec le réseau que construiraient deux impulsions de durée  $\tau_c$ , limitées par transformée de Fourier et séparées par un intervalle  $t_{12}$ . Le facteur de relaxation exprime la destruction progressive de la cohérence atomique dépositaire de la mémoire de l'excitation pendant l'intervalle qui sépare les deux interactions de durée  $\tau_c$  avec le champ appliqué.

La composante incohérente du réseau de Bragg est construite à partir du terme  $s(\omega) = S_0(\omega) - \bar{S}_0(\omega)$ , dont l'intervalle caractéristique de variation, de l'ordre de  $\tau_L^{-1}$ , est, à la différence de celui de  $\bar{S}_0(\omega)$ , beaucoup plus petit que  $\gamma_{ab}$ .

A l'aide de la décomposition (Eq. III.5) introduite précédemment, on obtient :

$$s(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{v} t_{12}} \otimes \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + (\vec{k} \cdot \vec{v})^2} = \sum_p e^{-i\Delta_p t_{12}} s'_p(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) \quad (\text{III.16})$$

où  $\Delta_p = p \tau_L^{-1}$

$$\text{et où : } s'_p(\omega) = \frac{1}{\pi} \times \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + (\omega - \omega_{ab} - \Delta_p)^2} \int_{\Delta_p}^{\Delta_p + \tau_L^{-1}} d\Delta s(\omega_{ab} + \Delta) \quad (\text{III.17})$$

La fonction  $s'_p(\omega)$  représente la probabilité d'excitation par un couple d'impulsions de durée  $\tau_L$ , de fréquence centrale  $\omega_{ab} + p \tau_L^{-1}$ , limitées par transformée de Fourier et de spectre de puissance  $s'_p(\omega)$ . Le domaine excité par le couple élémentaire s'étend sur toute la largeur homogène  $\gamma_{ab}$  de la raie. Aussi la probabilité d'excitation est elle, en chaque point de ce domaine,  $\gamma_{ab} \tau_L$  fois plus faible que dans la situation où  $\gamma_{ab}$  est plus petit que  $\tau_L^{-1}$ , la largeur du domaine excité étant alors  $\tau_L^{-1}$ . Dans les limites imposées par la condition  $t_{12} \ll \tau_L$ , la fonction  $s'_p(\omega)$  est indépendante de  $t_{12}$ . La contribution de chaque couple élémentaire à la formation du réseau de Bragg s'écrit :

$$\hat{n}'_p(1, \vec{v}) \propto s'_p(\omega_{ab} + \vec{k} \cdot \vec{v}) n(\vec{v}) e^{-i\Delta_p t_{12}}$$

Les contributions émanant des différents couples élémentaires se combinent avec la contribution cohérente  $\hat{n}_c(1, \vec{v}) \exp - \gamma_{ab} |t_{12}|$  pour construire le réseau de Bragg dont le coefficient de Fourier d'ordre 1 est finalement donné par l'expression :

$$\hat{n}_{ab}(1, \vec{v}) = \hat{n}_c(1, \vec{v}) e^{-\gamma_{ab} |t_{12}|} + \sum_p \hat{n}'_p(1, \vec{v}) \quad (\text{III.18})$$

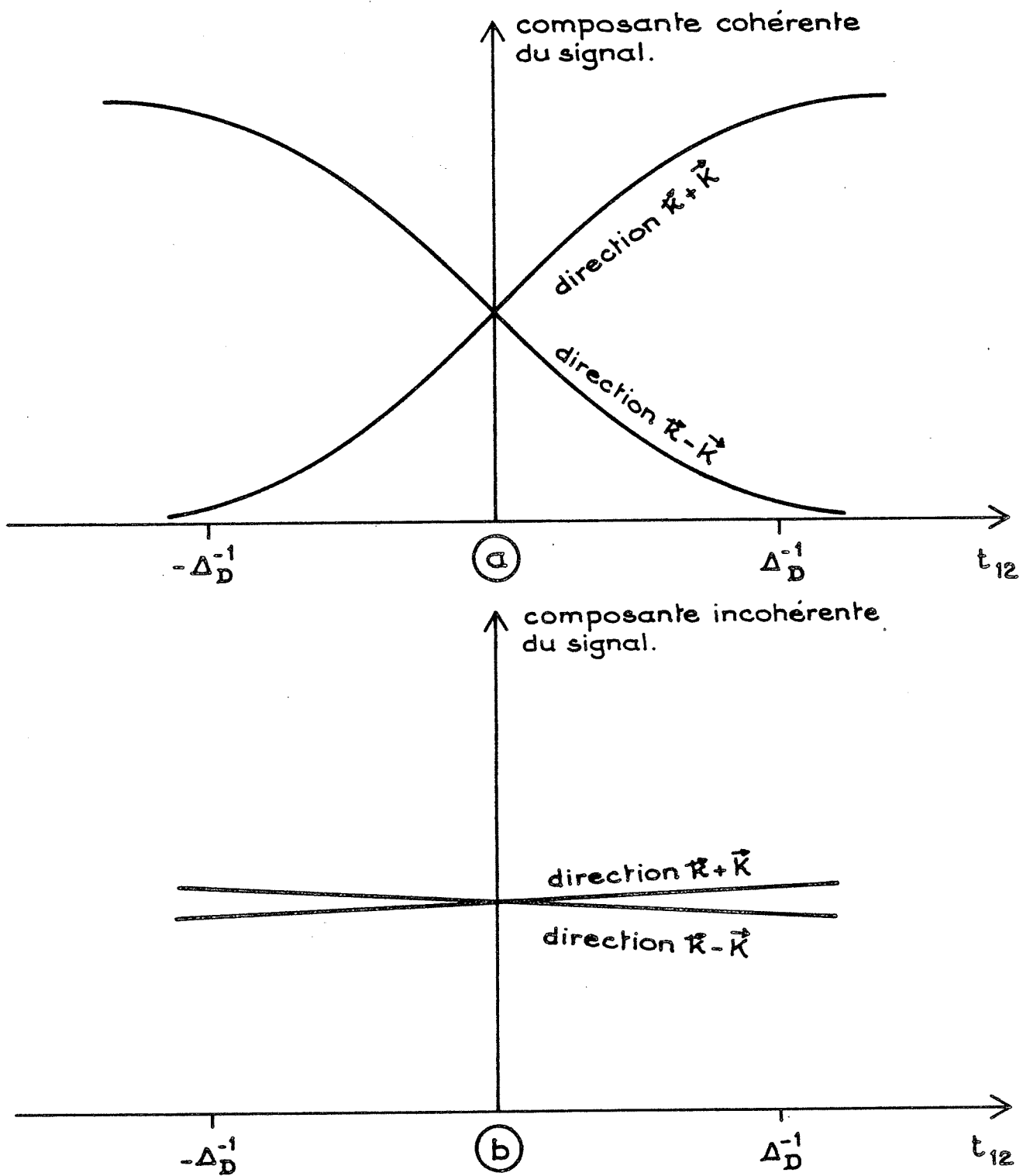


Figure 7 : Signal de mélange à quatre ondes retardées en régime de champ faible en fonction de l'écart  $t_{12}$  entre impulsions :

- a) Composante cohérente du signal.
- b) Composante incohérente du signal.

L'échelle relative des signaux est respectée.

## C - LECTURE DU RESEAU

## 1 - LECTURE PAR UNE IMPULSION BREVE

La structure inscrite par les deux premières impulsions de durée  $\tau_L$  est sondée par une impulsion limitée par transformée de Fourier, de vecteur d'onde  $\vec{k}$ . Nous considérons la lecture d'un réseau inscrit dans des situations de faible ( $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$ ) ou de forte ( $\gamma_{ab} \tau_L \gg 1$ ) relaxation, mais dans tous les cas, la durée  $\tau'_L$  de l'impulsion sonde est suffisamment brève pour satisfaire les conditions :

$$\gamma_{ab} \tau'_L \ll \Delta_D \tau'_L \ll 1.$$

a - Réseau inscrit en régime de relaxation faible  $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$

L'onde de lecture est diffractée par un réseau de Bragg dont le coefficient de Fourier d'ordre 1 est donné par l'équation III.12. Chacune des composantes du réseau diffracte l'onde de lecture selon le schéma proposé au § D du Chapitre II. Les plans réticulaires de chaque composante du réseau de Bragg sont décalés de façon quelconque par rapport aux plans réticulaires de n'importe quelle autre composante. Il s'ensuit que l'intensité totale diffractée est en moyenne la somme des intensités diffractées par les différentes composantes de  $\hat{n}_{ab}(1, \vec{v})$ .

La composante cohérente  $\hat{n}_c(1, \vec{v})$  est identique à celle que produirait un couple de deux impulsions limitées par transformée de Fourier, de durée  $\tau_c$ , séparées par un intervalle  $t_{12}$ . La diffraction d'une impulsion brève par une telle structure est décrite dans le paragraphe D du Chapitre II. On y montre que le signal s'éteint au bout d'un temps  $\Delta_D^{-1}$  et que sa direction d'émission bascule de  $\vec{k}-\vec{K}$  à  $\vec{k}+\vec{K}$  lorsque l'intervalle  $t_{12}$  varie de  $\Delta_D^{-1}$  autour de la position  $t_{12} = 0$  [Fig. 7a]. L'amplitude du signal cohérent est proportionnelle au nombre d'atomes excités, soit  $\bar{S}_0 N$ , où  $N$  est le nombre d'atomes éclairés par les deux premières impulsions lumineuses. L'énergie totale diffractée par la composante cohérente du signal est donc proportionnelle au produit  $(\bar{S}_0 N)^2 \Delta_D^{-1}$  de l'intensité émise par la durée de l'émission.

Chacun des termes  $\hat{n}_p(1, \vec{v})$  se comporte comme la composante de Fourier d'ordre 1 d'un réseau créé par deux impulsions de durée  $\tau_L$ , limitées par transformée de Fourier. La diffraction d'une impulsion brève sur ce réseau donne naissance à un signal de durée  $\tau_L$ . La direction d'émission bascule de  $\vec{k}-\vec{K}$  à  $\vec{k}+\vec{K}$  lorsque  $t_{12}$  varie de  $\tau_L$  autour de la position  $t_{12} = 0$  [Fig. 7b]. Le nombre d'atomes éclairés à résonance par les impulsions impliquées dans la formation d'un réseau élémentaire est  $N/(\Delta_D \tau_L)$ . L'énergie diffractée par un réseau élémentaire est donc proportionnelle à  $s^2(\omega) N^2 \tau_L^{-1} \Delta_D^{-2}$ . Elle fluctue autour d'une valeur moyenne proportionnelle à  $\bar{S}_0^2 N^2 \tau_L^{-1} \Delta_D^{-2}$ . Les fluctuations sont du même ordre de grandeur que la valeur moyenne. La loi des grands nombres prévoit alors que l'énergie totale émise par les  $\Delta_D \tau_L$  réseaux élémentaires présente des fluctuations relatives de l'ordre de  $(\Delta_D \tau_L)^{-1/2}$  autour de l'énergie moyenne. Cet argument ne prend pas en compte les fluctuations liées aux termes d'interférence entre les émissions associées aux différents réseaux. Un calcul complet montre qu'elles sont toutes de l'ordre de  $(\Delta_D \tau_L)^{-1/2}$ . Il apparaît donc qu'une seule mesure de l'énergie du signal est une bonne estimation de sa valeur moyenne, lorsque  $\Delta_D \tau_L \gg 1$ .

Les  $\Delta_D \tau_L$  réseaux rayonnent au total une énergie proportionnelle à  $\bar{S}_0^2 N^2 \Delta_D^{-1}$ . Cette émission constitue la composante incohérente du signal d'écho stimulé. Composantes cohérente et incohérente transportent la même énergie. Dans la situation envisagée, où  $\Delta_D \tau_L \gg 1$ , la composante incohérente du signal se présente, lorsque  $t_{12}$  varie sur un intervalle de quelques  $\Delta_D^{-1}$  autour de  $t_{12} = 0$ , comme un fond constant sur lequel se détache la variation rapide de la composante cohérente.

b - Réseau inscrit en régime de relaxation forte ( $\gamma_{ab} \tau_L \gg 1$ )

Comme dans la situation où  $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$ , l'énergie diffractée par l'échantillon est obtenue en additionnant les énergies diffractées par les différentes composantes du réseau de Bragg dont la combinaison est décrite par l'équation III.18.

A partir de la composante cohérente  $\hat{n}_c(1, \vec{v}) \exp - \gamma_{ab} |t_{12}|$  (Eq. III.18), l'impulsion de lecture construit des dipôles optiques affectés d'une phase initiale  $-\vec{k} \cdot \vec{v} t_{12}$ . La phase de l'onde rayonnée par chaque classe de vitesse  $\vec{v}$  évolue en raison du décalage Doppler  $\vec{k} \cdot \vec{v}$  qui affecte la fréquence d'émission. La phase développée au cours d'un intervalle de temps  $\tau$  après l'arrivée de l'impulsion sonde s'élève à  $\vec{k} \cdot \vec{v} \tau$ . Cette phase, combinée à la phase initiale  $-\vec{k} \cdot \vec{v} t_{12}$ , s'annule en  $\tau = t_{12}$ . Toutes les ondes, alors en phase, interfèrent pour construire le signal. Entre l'instant de la formation des dipôles par l'impulsion de lecture et l'instant où ils émettent le signal, leur relaxation est décrite par un facteur  $\exp - \gamma_{ab} t_{12}$ . L'amplitude du champ diffracté est donc, par rapport à la situation de relaxation faible ( $\gamma_{ab} \tau_L \ll 1$ ), réduite d'un facteur  $\exp - 2 \gamma_{ab} t_{12}$ . L'énergie rayonnée est donc proportionnelle à  $(\bar{S}_0 N)^2 \Delta_D^{-1} \exp - 4 \gamma_{ab} t_{12}$ .

Les atomes qui contribuent à chacun des termes  $\hat{n}'_p(1, \vec{v})$  sont répartis sur un intervalle spectral de l'ordre de  $\gamma_{ab}$ . Une fraction  $\gamma_{ab}/\Delta_D$  des  $N$  atomes éclairés par les impulsions laser est donc susceptible de participer à la formation d'un réseau élémentaire. La probabilité d'excitation par une composante spectrale élémentaire est de l'ordre de  $s(\omega)/\gamma_{ab} \tau_L$ . Le champ émis par chaque réseau élémentaire a donc une amplitude proportionnelle à  $N s(\omega)/\Delta_D \tau_L$ . Les atomes, excités sur un domaine spectral de largeur  $\gamma_{ab}$  émettent pendant une durée  $\gamma_{ab}^{-1}$ . Comme  $\bar{s}^2(\omega) \sim \bar{S}_0^2$ , l'énergie moyenne émise par chaque réseau élémentaire est proportionnelle à  $(N \bar{S}_0 / \Delta_D \tau_L)^2 \gamma_{ab}^{-1}$ . Les  $\Delta_D \tau_L$  contributions élémentaires s'ajoutent pour constituer la composante incohérente du signal, dont l'énergie est ainsi proportionnelle à :

$$(N \bar{S}_0)^2 \Delta_D^{-1} / (\gamma_{ab} \tau_L).$$

Le rapport d'intensité entre la composante cohérente et la composante incohérente du signal est donc de l'ordre de  $\gamma_{ab} \tau_L \exp(-4 \gamma_{ab} t_{12})$ .

## 2 - LECTURE PAR UNE IMPULSION LONGUE

Une impulsion de durée  $\tau_L'$  et de temps de corrélation  $\tau_c' \ll \tau_L'$  peut être considérée comme un train d'impulsions élémentaires de durée  $\tau_c'$ , limitées par transformée de Fourier, sans corrélation mutuelle. Les  $\tau_L'/\tau_c'$  impulsions élémentaires sont diffractées par le réseau de Bragg. L'énergie totale du signal est la somme des énergies des  $\tau_L'/\tau_c'$  signaux élémentaires. Les représentations proposées ci-dessus, pour la lecture par une impulsion brève, s'appliquent à l'analyse de chacun de ces signaux.



## D - EXPERIENCES DE SPECTROSCOPIE COHERENTE EN LUMIERE INCOHERENTE

Les propriétés des réseaux transitoires inscrits par des impulsions corrélées décalées dans le temps ont été exploitées pour mesurer des temps de relaxation beaucoup plus petits que  $\tau_L$  et pour réaliser des excitations cohérentes sur des domaines spectraux de largeur très supérieure à  $\tau_L^{-1}$ .

### 1 - MESURES DE RELAXATIONS RAPIDES

En phase gazeuse, une expérience a permis de déterminer le temps de relaxation  $\gamma_{ab}^{-1}$  des cohérences atomiques associées aux raies  $D_1$  et  $D_2$  de la vapeur de sodium sous forte pression d'argon [11]. Les impulsions excitatrices ont une durée de plusieurs nanosecondes et une largeur spectrale de 1,5 nm. La résolution temporelle ainsi assurée est de l'ordre de  $\tau_c = 7$  ps. Sous une pression d'argon de 1,9 atm, un temps de relaxation  $\gamma_{ab}^{-1}$  de 12 ps a pu être mesuré.

Par cette méthode, de nombreux temps de relaxation transversale  $T_2$  ont été déterminés en phase condensée. C'est ainsi qu'un temps de relaxation de 130 fs a été mesuré dans le crésyl violet à l'aide d'impulsions de plusieurs nanosecondes de durée et d'une largeur spectrale de 8,7 nm [7]. Dans le sulfure de carbone, le temps de relaxation de la biréfringence induite a été déterminé à l'aide d'impulsions nanosecondes. Deux temps caractéristiques  $T_2 = 0,2$  ps et  $T'_2 = 2$  ps ont pu être mis en évidence [8].

### 2 - EXCITATION COHERENTE SUR UN LARGE DOMAINE SPECTRAL

Comme nous l'avons vu au paragraphe D du Chapitre II, la direction d'émission de l'écho bascule de  $\vec{k}-\vec{K}$  en  $\vec{k}+\vec{K}$  lorsque l'ordre d'arrivée des deux premières impulsions est inversé. Le domaine de variation de  $t_{12}$  sur lequel s'effectue le basculement est de l'ordre de l'inverse du domaine spectral excité de façon cohérente. Lorsque l'excitation est produite par des impulsions limitées par transformée de Fourier de durée  $\tau_L$ , le basculement s'accomplit sur un domaine de variation de  $t_{12}$  de

l'ordre  $\Delta_D^{-1}$  si  $\tau_L \Delta_D \ll 1$  et de l'ordre de  $\tau_L^{-1}$  si  $\Delta_D \tau_L \gg 1$ . Nous avons vu au paragraphe C.1.a de ce chapitre que lorsque l'excitation est produite par deux impulsions à large bande spectrale corrélées entre elles, le basculement de la composante "cohérente" du signal se produit aussi sur un domaine de variation de  $t_{12}$  de l'ordre de  $\Delta_D^{-1}$  pourvu que  $\Delta_D \tau_c \ll 1$ . Cette propriété a été vérifiée dans une vapeur de Cs [23]. Les impulsions excitatrices sont accordées à la transition  $6s - 7p \ ^2P_{1/2}$ . La durée des impulsions ( $\sim 10$  ns) est très supérieure à l'inverse de la largeur Doppler ( $\Delta_D = 5.2 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ ). Le temps de corrélation de la lumière est de 100 ps.

Une autre signature d'excitation cohérente sur un domaine spectral de largeur très supérieure à  $\tau_L^{-1}$  a été obtenue dans une expérience de battement entre deux transitions atomiques dans le rubidium [24]. Les deux raies  $D_1$  et  $D_2$ , dont les fréquences  $\nu_1$  et  $\nu_2$  sont distantes de 7,2 THz, sont excitées par deux impulsions corrélées de plusieurs nanosecondes. Le caractère cohérent de l'excitation se manifeste par la présence de deux termes en  $\exp - i (\vec{K}\vec{r} + 2 \pi \nu_1 t_{12})$  et  $\exp - i (\vec{K}\vec{r} + 2 \pi \nu_2 t_{12})$  dans le réseau spatial inscrit dans la population du niveau fondamental commun aux deux transitions. L'amplitude du réseau spectral se trouve ainsi modulée à fréquence  $(\nu_1 - \nu_2)$  en fonction de  $t_{12}$ . Il en résulte une modulation du signal diffracté, en fonction de  $t_{12}$ , à la période de battement  $1/(\nu_2 - \nu_1) = 140$  fs.

## E - CONCLUSION

Dans l'excitation produite par deux impulsions à large bande spectrale, corrélées entre elles, nous avons reconnu une contribution identique à l'excitation que produiraient deux impulsions limitées par transformée de Fourier, de durée  $\tau_c$  égale à l'inverse de la largeur spectrale de l'excitation réellement appliquée à l'échantillon. Lorsque les impulsions excitatrices sont décalées dans le temps de  $t_{12}$ , c'est la cohérence atomique qui conserve la mémoire de l'excitation pendant l'intervalle  $t_{12}$  qui sépare les impulsions brèves équivalentes, associées à l'excitation large bande. De cette mémoire dépend l'inscription d'un réseau transitoire dans l'échantillon. Plusieurs exemples nous ont permis d'illustrer comment, en sondant le réseau transitoire, on suit l'évolution de la cohérence atomique au cours d'intervalles de durée  $t_{12}$  très inférieure à la durée  $\tau_L$  des impulsions excitatrices. Dans la situation  $t_{12} < \tau_L$  les deux premières impulsions excitatrices se chevauchent dans le temps et le signal est émis pendant la durée de l'impulsion sonde.

Cette situation diffère sensiblement de celle rencontrée dans les expériences habituelles d'écho de photon, qui mettent en jeu une séquence d'impulsions excitatrices bien séparées les unes des autres dans le temps, bien séparées aussi du signal d'écho dont elles provoquent l'émission. La durée des impulsions est alors choisie très inférieure aux temps de relaxation du système atomique. Les processus de relaxation opèrent seulement pendant les intervalles d'évolution libre qui séparent les impulsions. La séparation ainsi établie entre la relaxation et l'interaction avec la lumière permet de réaliser les expériences dans des conditions d'excitation intense, qui améliorent le niveau du signal sans perturber le mécanisme de relaxation observé.

Dans la situation où  $t_{12} < \tau_L$ , relaxation et interaction avec la lumière affectent simultanément l'évolution du système atomique. Nous avons vu dans ce chapitre qu'en régime de champ faible, tout se passe comme si le système atomique évoluait librement pendant l'intervalle  $t_{12}$  qui sépare les deux impulsions brèves équivalentes associées à l'excitation large bande. Irradié par une impulsion sonde peu intense, le système évolue aussi librement entre l'instant de formation des dipôles à partir du réseau

transitoire inscrit dans l'échantillon et l'instant d'émission du signal par ces dipôles. Les mesures de relaxation que nous citons dans le paragraphe D de ce chapitre ont toutes été réalisées en champ faible.

Une excitation plus intense augmente le niveau de signal mais l'image de l'évolution libre entre deux excitations brèves séparées de  $t_{12}$  devient alors caduque.

Le chapitre suivant présente un ensemble d'études expérimentales et théoriques que nous avons réalisées afin de préciser l'effet d'un champ stochastique intense.

## CHAPITRE IV

ECHOS DE PHOTON STIMULES EN LUMIERE INCOHERENTE  
EFFETS DE CHAMP FORT

## A - INTRODUCTION

Ce chapitre se propose de répondre aux questions soulevées par l'utilisation de champs forts dans le processus spécifique d'excitation large bande décrit au chapitre précédent. Comment un champ fort modifie-t-il l'évolution du système atomique ? A quelle valeur de l'intensité d'excitation la frontière entre le régime de champ fort et le régime de champ faible se situe-t-elle ? La réponse à ces questions devrait permettre de préciser s'il existe des conditions d'excitation plus favorables que celles du régime de champ faible, pour la mesure de temps de relaxation atomique très courts.

Dans le but d'isoler les effets propres à l'utilisation d'un champ fort de ceux inhérents à la relaxation atomique, nous avons délibérément choisi d'étudier un cas modèle pour lequel la relaxation atomique est négligeable à l'échelle de temps de la formation du signal.

De plus, ne sont retenues que les configurations d'excitation pour lesquelles un champ seulement parmi les trois est intense. Dans ce cadre, la situation expérimentale de mélange à quatre ondes en champ large bande est couverte par l'étude de l'effet d'un champ de lecture fort, d'une part, et par l'étude de l'effet d'inscription du réseau par un champ intense corrélé à un champ faible, d'autre part.

De nombreux travaux ont été consacrés à l'étude de l'interaction de systèmes atomiques avec un champ large bande intense pour interpréter les signaux observés dans les expériences de résonance multiphotonique [9] ou de fluorescence à résonance [10]. L'originalité de la configuration expérimentale analysée offre la possibilité d'étendre les investigations à des situations nouvelles. En effet, les signaux transitoires cohérents se différencient des signaux précédents par la nature des quantités

atomiques mises en jeu et par le caractère particulier de l'excitation réalisée par deux impulsions large bande corrélées. Les signaux d'excitation multiphotonique résonnante et de fluorescence à résonance dépendent de la valeur moyenne à un instant donné de la population du niveau atomique peuplé par l'excitation. Les signaux transitoires cohérents résultent de l'interférence cohérente des champs élémentaires émis par tous les dipôles créés au cours du processus. L'intensité du signal s'exprime en fonction des cohérences atomiques  $\rho_{ab}$  par la relation :

$$\sum_m \sum_n \rho_{ab}(m, t) \rho_{ab}^*(n, t) F_{mn}(t)$$

Les sommes sur  $m$  et  $n$  couvrent tous les atomes excités et le terme  $F_{mn}(t)$  est un facteur de phase qui dépend de la position et de la vitesse des atomes considérés. Compte-tenu du caractère stochastique des champs, en règle générale une valeur significative des signaux est obtenue en prenant la moyenne des valeurs sur un grand nombre de réalisations de la séquence excitatrice. En définitive, le signal observé fait intervenir des fonctions de corrélation à deux atomes du type  $\langle \rho_{ab}(m, t) \rho_{ab}^*(n, t) \rangle$  au contraire des signaux d'excitation multiphotonique et de fluorescence à résonance où n'interviennent que des moments statistiques à un seul atome.

Une autre spécificité du problème abordé réside dans le caractère statistique non Markovien de l'excitation produite par deux impulsions répliquées l'une de l'autre et décalées dans le temps. La définition mathématique d'un processus aléatoire Markovien est donnée dans la référence [27]. Rappelons la brièvement ici. Un processus aléatoire décrit par la variable  $X(t)$  est Markovien si la donnée de  $X(t')$  avec  $t' < t$  fournit autant d'informations sur  $X(t)$  que les données des valeurs ordonnées successives de la variable  $X(t')$ ,  $X(t'')$ ,  $X(t''')$ ... avec  $t''' < t'' < t'$ . Le processus aléatoire considéré est le champ total composé par les deux premières impulsions laser. Soit  $E'(t)$  le champ associé à l'une des impulsions. Soit  $t_{12}$  le décalage temporel entre les impulsions. Le champ total associé aux deux impulsions jumelles s'écrit :

$$E(t) = E'(t) + \alpha E'(t - t_{12})$$

La valeur du champ total à l'instant  $t'$ ,  $E(t')$ , peut, lorsque  $t - t_{12} < t' < t$ , contenir moins d'information sur  $E(t)$  que l'ensemble  $\{E(t'), E(t - t_{12})\}$ , dès que  $t_{12}$  est supérieur au temps de corrélation  $\tau_c$  de  $E'(t)$ . Le champ total est donc non Markovien pour  $t_{12} > \tau_c$ , indépendamment des propriétés statistiques de  $E'(t)$ .

Les propriétés particulières des transitoires cohérents exigent une approche théorique adaptée. Nous en traçons les grandes lignes dans le paragraphe B. Après y avoir établi l'équation du mouvement d'un système atomique soumis à une excitation stochastique, nous obtenons une expression formelle du signal et de sa moyenne statistique. Nous discutons les conditions dans lesquelles l'équation du mouvement peut être résolue. Ceci met en lumière les paramètres temporels qui gouvernent le mouvement. Le paragraphe C est consacré à la description de la situation expérimentale et à l'exposé des résultats expérimentaux. Enfin, un bilan de l'étude en champ fort est proposé pour conclure le chapitre.

## B - EXPRESSION FORMELLE DU SIGNAL

### 1 - LE MODELE

Rappelons que la séquence excitatrice décrite au chapitre précédent se compose de deux impulsions de lumière incohérente corrélées entre elles suivies d'une impulsion de lecture non corrélée aux précédentes. Chacune des impulsions satisfait la condition III.3 :

$$\Delta_D \tau_c \ll 1 \quad (\text{IV.1})$$

Les deux premières impulsions de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  ont une direction de polarisation rectiligne commune, perpendiculaire au plan  $(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ . Le champ total correspondant aux deux impulsions décalées temporellement s'écrit :

$$E_X^{12}(\vec{r}, t) = \left[ \xi_1(t) e^{i(\omega_{ab} t - \vec{k}_1 \vec{r})} + \xi_2(t) e^{i(\omega_{ab} t - \vec{k}_2 \vec{r})} \right] + \text{c.c.} \quad (\text{IV.2})$$

Les amplitudes  $\xi_1(t)$  et  $\xi_2(t)$  sont des nombres complexes. Elles rendent compte de fluctuations de phase et d'amplitude du champ stochastique d'une impulsion unique. Leur largeur est de l'ordre de grandeur de la durée de cette impulsion  $\tau_L$  alors que leur temps caractéristique d'évolution est beaucoup plus court. Ces deux impulsions sont jumelles, ce qui se traduit par la condition :

$$\xi_2(t) = \alpha \xi_1(t - t_{12}) \quad (\text{IV.3})$$

où  $\alpha$  est un coefficient d'atténuation. L'expression du champ total  $E_X^{12}(\vec{r}, t)$  prend alors la forme :

$$E_X^{12}(\vec{r}, t) = \xi^{12}(\vec{r}, t) e^{i(\omega_{ab} t - \vec{k}_1 \vec{r})} + \text{c.c.}$$

où

$$\xi^{12}(\vec{r}, t) = \xi_1(t) + \alpha \xi_1(t - t_{12}) e^{-i \vec{K} \vec{r}} \quad (\text{IV.4})$$

$\vec{K} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$  est le vecteur de Bragg du réseau de population inscrit dans l'échantillon par ces impulsions corrélées. La lecture en est assurée par une troisième impulsion décorrélée des deux premières mais de même



polarisation. L'intervalle de temps séparant l'inscription de la lecture est de l'ordre de grandeur de la durée des impulsions. La condition II.12 que nous supposons satisfaite assure que l'effacement par diffusion du réseau est négligeable. Par ailleurs, nous avons choisi de travailler avec des atomes modèles pour lesquels relaxation atomique est elle-même négligeable pendant la durée de l'expérience, ce qui se traduit par la condition supplémentaire

$$\gamma_b^{-1}, \gamma_{ab}^{-1} \gg \tau_L \quad (\text{IV.5})$$

Pendant l'interaction avec l'impulsion de lecture, le champ perçu par les atomes s'écrit :

$$E_X^3(\vec{r}, t) = \xi_3(t) e^{i(\omega_{ab} t - \vec{k}_3 \vec{r})} + \text{c.c.} \quad (\text{IV.6})$$

Le signal transitoire correspond à la diffraction de cette onde par le réseau. Dans ce travail, les informations sont déduites de l'analyse de l'énergie émise dans l'ordre 1, qui correspond à une direction de propagation du signal définie par  $\vec{k}_3 + \vec{K}$ . L'impulsion de lecture se propage colinéairement avec la première impulsion de la séquence ( $\vec{k}_1 = \vec{k}_3$ ), ce qui implique que l'accord de phase dans la direction de propagation  $\vec{k}_2 = \vec{k}_3 + \vec{K}$  du signal détecté est réalisé quelle que soit l'épaisseur L de l'échantillon (§ C, Chapitre II).

Dans le paragraphe suivant, nous dérivons une expression formelle du signal émis dans une telle configuration.

## 2 - EXPRESSION FORMELLE DU SIGNAL PRODUIT PAR UNE REALISATION UNIQUE DE L'EXCITATION

Comme nous l'avons vu au Chapitre I, la polarisation macroscopique induite dans l'échantillon est à l'origine du rayonnement transitoire émis (éq. II.8). Celle-ci s'exprime directement en fonction de la cohérence optique entre les états a et b, que construit l'impulsion de lecture à partir du réseau de population créé par les deux premières impulsions (éq. II.1). Dans le cas où les impulsions de la séquence excitatrice sont limitées par transformée de Fourier, les équations du mouvement dans l'approximation des ondes tournantes sont décrites par le

système différentiel II.5. Ce système d'équations est étendu au cas où les champs excitateurs présentent des fluctuations de phase.

Dans l'approximation des ondes tournantes au système différentiel A.II.5 se substitue le nouveau système :

$$\frac{dy}{dt} = \mathbf{m}(t) y \quad (\text{IV.7})$$

Les composantes du vecteur  $y$  s'expriment en fonction des cohérences atomiques et des populations par les relations :

$$y = \begin{bmatrix} y_{-1}(\vec{r}, \vec{v}, t) = \sqrt{2} \tilde{\rho}_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) \\ y_0(\vec{r}, \vec{v}, t) = \rho_{bb} - \rho_{aa} = n_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) \\ y_{+1}(\vec{r}, \vec{v}, t) = y_{-1}^* \end{bmatrix}$$

Rappelons que  $\tilde{\rho}_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) = \rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) e^{-i(\omega_{ab} t - \vec{k} \cdot \vec{r})}$ ,  $\vec{k}$  désigne le vecteur d'onde commun aux ondes 1 et 3,  $\vec{k} = \vec{k}_1 = \vec{k}_3$ . L'expression de  $\mathbf{m}(t)$  est la suivante :

$$\mathbf{m}(\vec{r}, \vec{v}, t) = \mathbf{m}_0(\vec{v}) + \mathbf{m}_1(\vec{r}, t)$$

avec :

$$\mathbf{m}_0(\vec{v}) = \begin{bmatrix} i\vec{k} \cdot \vec{v} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -i\vec{k} \cdot \vec{v} \end{bmatrix}$$

et

$$\mathbf{m}_1(\vec{r}, t) = \begin{bmatrix} 0 & \frac{i \chi(\vec{r}, t)}{\sqrt{2}} & 0 \\ i \frac{\chi^*(\vec{r}, t)}{\sqrt{2}} & 0 & -\frac{i \chi(\vec{r}, t)}{\sqrt{2}} \\ 0 & -\frac{i \chi^*(\vec{r}, t)}{\sqrt{2}} & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{IV.8})$$

où  $\chi(t) = \frac{\mu_{ab} \xi(t)}{h}$

C'est par l'intermédiaire de  $\chi(t)$ , fréquence de Rabi complexe que le système différentiel IV.7 prend en compte des fluctuations de l'excitation. Ceci implique la résolution d'un système d'équations différentielles à coefficients aléatoires.

On peut exprimer formellement  $y(\vec{r}, \vec{v}, t)$  en fonction de sa valeur à l'instant initial  $t_1$ , en définissant l'opérateur  $u(\vec{r}, \vec{v}, t, t_1)$  :

$$y(\vec{r}, \vec{v}, t) = u(\vec{r}, \vec{v}, t, t_1) y(\vec{r}, \vec{v}, t_1) \quad (\text{IV.9})$$

L'équation d'évolution de l'opérateur  $u$  linéaire et unitaire s'écrit :

$$\begin{cases} \frac{du(\vec{r}, \vec{v}, t, t_1)}{dt} = m(\vec{r}, \vec{v}, t) u(\vec{r}, \vec{v}, t, t_1) \\ u(\vec{r}, \vec{v}, t_1, t_1) = \mathbb{I} \end{cases} \quad (\text{IV.10})$$

où  $\mathbb{I}$  désigne la matrice unité.

Dans l'intervalle où le système interagit avec les deux premières impulsions, le champ est représenté par  $\xi_x^{12}(\vec{r}, t)$ . Le caractère périodique de  $\xi_x^{12}(\vec{r}, t)$  (éq. IV.4) en fonction de la projection  $\eta$  de  $\vec{r}$  dans la direction de  $\vec{K}$  est à l'origine de l'inscription du réseau spatial de population. D'après sa définition, l'opérateur d'évolution possède cette même propriété de périodicité. Après l'extinction de ces premières impulsions à  $t = t_E$ , la différence de population est représentée par la série de Fourier :

$$y_0(\vec{r}, \vec{v}, t) = n_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t_E) = \sum_{p=-\infty}^{p=+\infty} \hat{n}_{ab}(p, \vec{v}) e^{-i p \vec{K} \cdot \vec{r}} \quad (\text{IV.11})$$

$$\text{où } \hat{n}_{ab}(p, \vec{v}) = -Nn(\vec{v}) \times \frac{K}{2\pi} \int_0^{2\pi/K} d\eta e^{-ipK\eta} u_{00}(\eta, \vec{v}, t_E, t_0)$$

-  $Nn(\vec{v})$  représente la distribution d'équilibre avant l'excitation ( $t = t_0$ ) et  $u_{00}$  est l'élément de matrice qui relie les populations initiales ( $t = t_0$ ) et finale ( $t = t_E$ ).

La cohérence atomique induite par l'impulsion de lecture s'exprime à partir de l'équation IV.9. L'état initial du système, à l'instant  $t_s$  où cette impulsion débute, est défini par :

$$y(\vec{r}, \vec{v}, t_s) = \begin{bmatrix} 0 \\ \sum_p \hat{n}_{ab}(p, \vec{v}) e^{-ip\vec{K}\vec{r}} \\ 0 \end{bmatrix} \quad (\text{IV.12})$$

Pendant l'interaction du système avec ce rayonnement, le champ électromagnétique est représenté par  $\xi_x^3(t)$ , spatialement homogène. En conséquence, pendant la phase de lecture, l'opérateur d'évolution est indépendant de  $\vec{r}$ . La cohérence formée, à l'instant  $t > t_s$ , a pour expression :

$$y_{-1}(\vec{r}, \vec{v}, t) = u_{-10}(\vec{v}, t, t_s) \sum_p \hat{n}_{ab}(p, \vec{v}) e^{-ip\vec{K}\cdot\vec{r}} \quad (\text{IV.13})$$

L'expression du champ rayonné par la polarisation induite (éq. II.8) s'obtient en combinant les équations II.1 et IV.13 :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) \propto \int y_{-1}(\vec{r}, \vec{v}, t) \times e^{+i(\omega_{ab}t - \vec{k}\vec{r})} d\vec{v}$$

soit

$$\vec{E}(\vec{r}, t) \propto \sum_{p=-\infty}^{+\infty} e^{i[\omega_{ab}t - (\vec{k} + p\vec{K}) \cdot \vec{r}]} \int d\vec{v} \hat{\rho}(p, \vec{v}, t) \quad (\text{IV.14})$$

où

$$\hat{\rho}(p, \vec{v}, t) = u_{-10}(\vec{v}, t, t_s) \hat{n}_{ab}(p, \vec{v})$$

De cette relation on déduit l'expression de l'énergie émise dans les différents ordres du réseau. Notre procédure expérimentale ne s'intéresse qu'à l'énergie diffractée dans l'ordre 1, qui s'écrit :

$$W(+1) \propto \int dt \int d\vec{v} d\vec{v}' \hat{\rho}(1, \vec{v}, t) \hat{\rho}^*(1, \vec{v}', t) \quad (\text{IV.15})$$

où

$$\hat{\rho}(1, \vec{v}, t) = - Nn(\vec{v}) \frac{K}{2\pi} \int_0^{2\pi/K} d\eta e^{iK\eta} u_{-10}(\vec{v}, t, t_s) u_{00}(\eta, \vec{v}, t_E, t_0)$$

L'expression formelle ainsi établie est celle de l'énergie du signal transitoire cohérent de mélange à quatre ondes émis dans la direction  $\vec{k}_2$ , pour une réalisation particulière de la séquence excitatrice. L'analyse développée montre que formellement un opérateur d'évolution unique  $u(\vec{r}, \vec{v}, t, t_0)$  permet de décrire les deux phases distinctes du processus que sont l'écriture du réseau et sa lecture.

### 3 - EXPRESSION FORMELLE DE LA MOYENNE STATISTIQUE DU SIGNAL

Pour une réalisation unique de la séquence excitatrice, l'intensité du signal dépend de l'amplitude et de la phase des champs qui l'ont créé. Les fluctuations très rapides des champs produits par les sources large bande utilisées dans ce travail excluent leur caractérisation pour chaque réalisation. Par contre, on peut décrire ces champs fluctuants par leurs propriétés statistiques. Par conséquent, des informations significatives sur l'évolution du système atomique en présence de tels rayonnements, en particulier sur les paramètres temporels qui la gouvernent, sont déduites de la valeur moyenne des signaux enregistrés pour un grand nombre de réalisations de la séquence excitatrice. Dans ce paragraphe l'expression formelle des moments statistiques correspondants est établie.

La valeur moyenne du signal est déduite de l'équation IV.15 :

$$\langle W(1) \rangle \propto \int dt \int d\vec{v} d\vec{v}' \langle \hat{\rho}(1, \vec{v}, t) \hat{\rho}^*(1, \vec{v}', t) \rangle \quad (\text{IV.16})$$

Cette relation fait apparaître, comme nous l'avons souligné en tête de ce chapitre, la fonction de corrélation à deux atomes des cohérences atomiques.

L'énergie moyenne  $\langle W(1) \rangle$  s'exprime simplement en fonction des éléments de matrice  $u_{ij}$  ( $i, j = 0, \pm 1$ ) compte tenu que la troisième impulsion est décorrélée des deux premières :

$$\begin{aligned} \langle W(1) \rangle &\propto \int dt \int d\vec{v} d\vec{v}' \int d\eta d\eta' n(\vec{v}) n(\vec{v}') \times & (IV.17) \\ &\times \langle u_{-10}(\vec{v}, t, t_s) u_{10}(\vec{v}', t, t_s) \rangle \\ &\times \langle u_{00}(\eta, \vec{v}, t_E, t_0) u_{00}(\eta', \vec{v}', t_E, t_0) \rangle \\ &\times e^{iK(\eta - \eta')} \end{aligned}$$

La nature des moments statistiques qui apparaissent dans l'intégrale suggère de substituer à l'opérateur monoatomique  $u$ , un opérateur d'évolution  $U$  qui décrit la corrélation entre paires d'atomes

$$U(\beta, t, t') = u(\eta, \vec{v}, t, t') \otimes u(\eta', \vec{v}', t, t') \quad (IV.18)$$

$\beta$  représente l'ensemble des variables  $(\eta, \vec{v}, \eta', \vec{v}')$ . Cette approche qui met en lumière le caractère cohérent de l'émission a été proposée par Brissaud et Frisch [28] pour le calcul des moments d'ordre deux d'une variable obéissant à une équation différentielle à coefficients aléatoires. L'opérateur d'évolution  $U(\beta, t, t')$  satisfait l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dU(\beta, t, t')}{dt} = [M_0(\vec{v}, \vec{v}') + M_1(\beta, t)] U(\beta, t, t') \quad (IV.19)$$

où

$$M_0(\vec{v}, \vec{v}') = m_0(\vec{v}) \otimes \mathbb{I} + \mathbb{I} \otimes m_0(\vec{v}')$$

$$M_1(\beta, t) = m_1(\eta, \vec{v}, t) \otimes \mathbb{I} + \mathbb{I} \otimes m_1(\eta', \vec{v}', t),$$

Plaçons nous en représentation d'interaction pour laquelle :

$$\tilde{M}_1(\beta, t) = e^{-M_0(\vec{v}, \vec{v}')t} M_1(\beta, t) e^{M_0(\vec{v}, \vec{v}')t}$$

$$\text{et } \tilde{U}(\beta, t, t') = e^{-M_0(\vec{v}, \vec{v}')t} U(\beta, t, t')$$

L'équation d'évolution devient :

$$\frac{d \tilde{U}(\beta, t, t')}{dt} = \tilde{M}_1(\beta, t) \tilde{U}(\beta, t, t') \quad (\text{IV.20})$$

et peut être résolue de façon formelle :

$$\tilde{U}(\beta, t, t') = \mathbb{I} + \int_{t'}^t dt_1 \tilde{M}_1(\beta, t_1) \tilde{U}(\beta, t_1, t') \quad (\text{IV.21})$$

En substituant dans l'équation IV.20, à  $\tilde{U}$  sa valeur donnée par l'équation IV.21 on obtient l'équation intégrodifférentielle suivante :

$$\frac{d \tilde{U}(\beta, t, t')}{dt} = \tilde{M}_1(\beta, t) \left( \mathbb{I} + \int_{t'}^t \tilde{M}_1(\beta, t_1) \tilde{U}(\beta, t_1, t') dt_1 \right) \quad (\text{IV.22})$$

d'où on déduit l'équation d'évolution de la valeur moyenne de  $\tilde{U}$  :

$$\frac{d \langle \tilde{U}(\beta, t, t') \rangle}{dt} = \langle \tilde{M}_1(\beta, t) \rangle + \int_{t'}^t \langle \tilde{M}_1(\beta, t) \tilde{M}_1(\beta, t_1) \tilde{U}(\beta, t_1, t') \rangle dt_1 \quad (\text{IV.23})$$

A l'issue de ce traitement nous avons fait apparaître une forme équivalente de l'équation d'évolution (éq. IV.22). Notons qu'il n'est pas nécessaire de caractériser le champ des impulsions excitatrices pour établir ces équations. Pour progresser dans la résolution de ce système, il est nécessaire de se donner un modèle qui précise les propriétés statistiques du champ stochastique.

#### 4 - PROPRIETES STATISTIQUES DU CHAMP

Le paramètre temporel qui mesure le caractère stochastique du champ est le temps de cohérence  $\tau_c$  de la lumière. Il coïncide avec la largeur de la fonction d'autocorrélation  $\langle E(t) E^*(t - \tau) \rangle$  du champ considéré. Il caractérise l'échelle de temps des fluctuations d'amplitude et de phase du rayonnement large bande. Il satisfait les deux conditions suivantes :

$$\begin{aligned} \tau_c &\ll \tau_L \\ \text{et } \tau_c &\ll \Delta_D^{-1} \end{aligned} \quad (\text{IV.24})$$

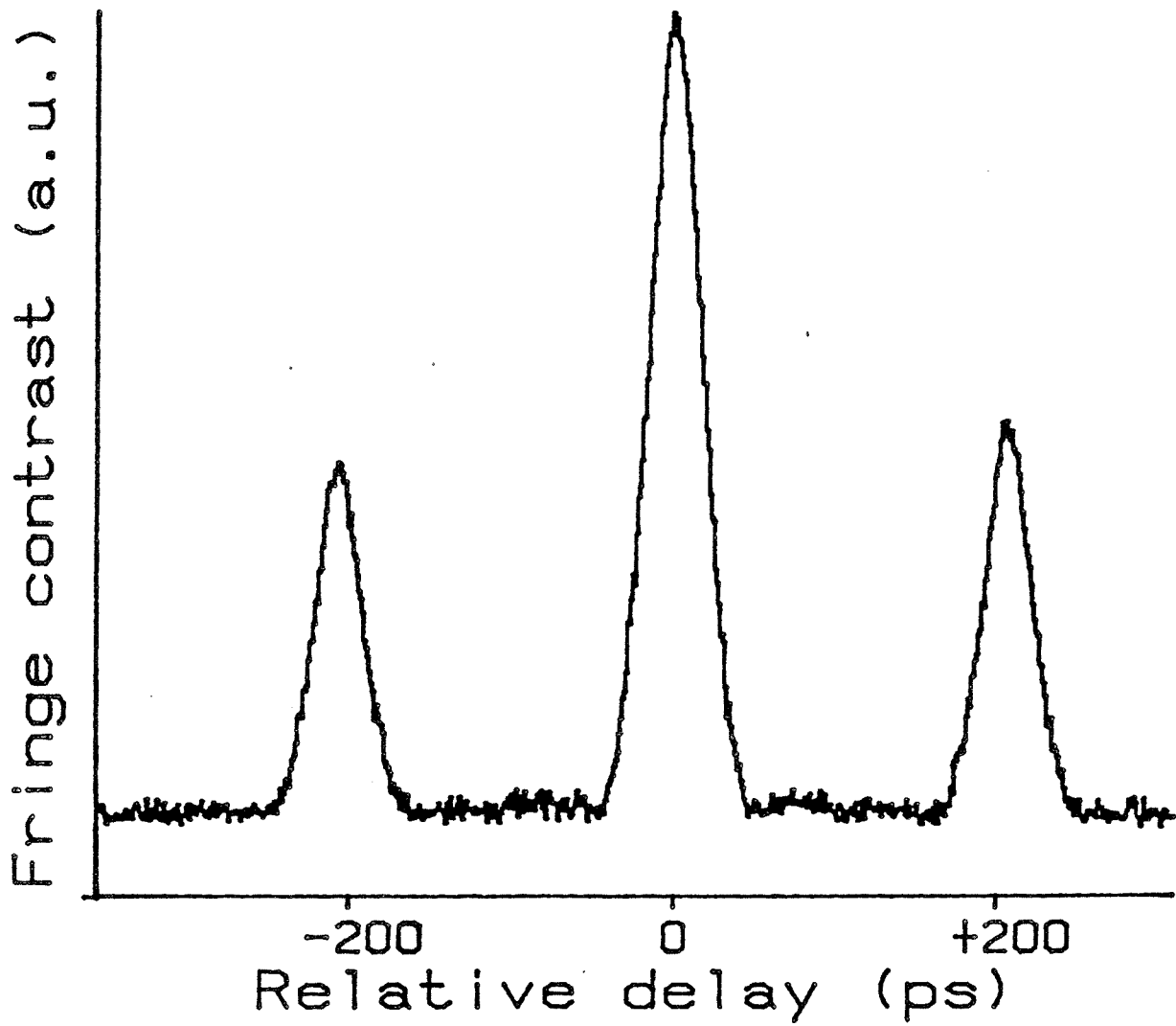


Figure 8 : Fonction d'autocorrélation d'amplitude expérimentale du champ composite créé par les deux impulsions d'inscription corrélées.



La deuxième condition assure que toutes les classes de vitesse sont excitées simultanément. Comme nous l'avons noté précédemment, le caractère aléatoire du champ est contenu dans son amplitude  $\xi(t)$ . De façon équivalente et par souci d'homogénéité avec les notations des articles en référence on peut utiliser la variable  $\chi(t)$  (éq. IV.8) qui intervient directement dans la définition des éléments de matrice de  $M(t)$ . Dans le modèle très simple que nous avons choisi, la fréquence de Rabi  $\chi(t)$  est exprimée comme le produit :

$$\chi(t) = \chi^\circ(t) \epsilon(t) \quad (\text{IV.25})$$

d'une enveloppe  $\chi^\circ(t)$  lentement variable, de largeur  $\tau_L$  et d'une *fonction aléatoire stationnaire*  $\epsilon(t)$ . Les premiers moments statistiques de  $\epsilon(t)$  sont définis par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} \langle \epsilon(t) \rangle &= 0 \\ \langle \epsilon(t) \epsilon^*(t - \tau) \rangle &= g(\tau) \\ \langle \epsilon(t) \epsilon(t - \tau) \rangle &= 0 \end{aligned} \quad (\text{IV.26})$$

La fonction d'autocorrélation  $g(\tau)$  est normalisée en sorte que :

$$g(0) = 1$$

Le temps de cohérence  $\tau_c$  est alors défini par :

$$\tau_c = \int d\tau g(\tau) \quad (\text{IV.27})$$

Toutes ces définitions caractérisent les propriétés statistiques d'un champ unique. Dans la configuration d'écho de photon stimulé que nous étudions, un tel champ unique  $E_x^3(t)$  est mis en jeu dans la phase de lecture du réseau transitoire par la troisième impulsion. La fonction de corrélation du processus d'excitation présente alors un seul pic dont la largeur  $\tau_c$  est le temps de corrélation du processus. En revanche, la phase d'inscription du réseau transitoire par les deux premières impulsions excitatrices met en jeu le champ composite  $E_x^{12}(t)$  défini par l'équation IV.4. La fonction d'autocorrélation de ce champ présente trois pics, de largeur  $\tau_c$ , centrés en  $\tau = 0, \pm t_{12}$  (Fig. 8). Le temps de corrélation  $\tau_m$  de

ce processus s'identifie au plus long des deux temps caractéristiques  $\tau_c$  et  $t_{12}$ . Dans la suite le temps de corrélation du processus exciteur est désigné par  $\tau_m$ . Selon la situation envisagée  $\tau_m$  coïncide avec  $\tau_c$  ou avec  $t_{12}$ .

En présence du processus d'excitation caractérisé par le paramètre  $\tau_m$ , le mouvement interne du système atomique est caractérisé par le temps d'évolution  $T$  dont le paragraphe suivant établit l'expression.

### 5 - TEMPS CARACTERISTIQUE D'EVOLUTION DU SYSTEME ATOMIQUE

Ce temps caractéristique apparaît dans le traitement perturbatif du système IV.23. On peut remplacer formellement l'opérateur  $\langle \tilde{U}(\beta, t, t') \rangle$  par son développement perturbatif :

$$\langle \tilde{U}(\beta, t, t') \rangle = \langle \tilde{U}^{(0)}(\beta, t, t') \rangle + \langle \tilde{U}^{(1)}(\beta, t, t') \rangle \dots + \langle \tilde{U}^{(n)}(\beta, t, t') \rangle + \dots$$

dont les termes sont solutions du système d'équations couplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} \langle \tilde{U}^{(n+1)}(\beta, t, t') \rangle = \int_{t'}^t dt_1 \langle \tilde{M}_1(\beta, t) \tilde{M}_1(\beta, t_1) \tilde{U}^{(n)}(\beta, t, t_1) \rangle \\ \tilde{U}^{(0)}(\beta, t, t') = \mathbb{I} \end{array} \right. \quad (\text{IV.28})$$

En particulier, l'équation satisfaite par  $\tilde{U}^{(1)}(\beta, t, t')$  s'écrit :

$$\frac{d}{dt} \tilde{U}^{(1)}(\beta, t, t') = \int_{t'}^t dt_1 \langle \tilde{M}_1(\beta, t) \tilde{M}_1(\beta, t_1) \rangle \quad (\text{IV.29})$$

L'opérateur  $\tilde{U}^{(1)}(\beta, t, t')$  détermine l'évolution du vecteur :

$$\tilde{Y}(\beta, t) = \tilde{y}(\vec{r}, \vec{v}, t) \otimes \tilde{y}(\vec{r}', \vec{v}', t) \quad (\text{IV.30})$$

$$\text{où } \tilde{y}(\vec{r}, \vec{v}, t) = e^{-m_0(\vec{v})t} y(\vec{r}, \vec{v}, t) \quad (\text{IV.31})$$

C'est un vecteur à 9 composantes qu'on peut écrire sous la forme d'un développement sur une base  $\{e_i\}$  :

$$\tilde{Y}(\beta, t) = \sum_i \tilde{Y}_i(\beta, t) e_i \quad (\text{IV.32})$$

On définit les vecteurs  $e_{-1}$ ,  $e_0$ ,  $e_1$  en choisissant sur ces vecteurs les composantes suivantes de  $\tilde{Y}(\beta, t)$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{Y}_1(\beta, t) = \tilde{y}_{-1}(\vec{r}, \vec{v}, t) \tilde{y}_1(\vec{r}', \vec{v}', t) \\ \tilde{Y}_0(\beta, t) = y_0(\vec{r}, \vec{v}, t) y_0(\vec{r}', \vec{v}', t) \\ \tilde{Y}_{-1}(\beta, t) = \tilde{y}_1(\vec{r}, \vec{v}, t) \tilde{y}_{-1}(\vec{r}', \vec{v}', t) \end{array} \right. \quad (\text{IV.33})$$

Ainsi qu'on peut le vérifier en examinant l'équation IV.17, l'énergie du signal dépend de l'évolution de ces seules composantes de  $\tilde{Y}(\beta, t)$  au cours de la séquence des impulsions excitatrices. On montre que le sous-espace sous-tendu par  $e_{-1}$ ,  $e_0$ ,  $e_1$  est globalement invariant sous l'action de l'opérateur  $\langle \tilde{M}_1(\beta, t) \tilde{M}_1(\beta, t_1) \rangle$ . L'opérateur  $\langle \tilde{U}^{(1)}(\beta, t, t') \rangle$  laisse donc lui aussi invariant ce sous-espace. On désigne par  $\langle \tilde{V}^{(1)}(\beta, t, t') \rangle$  la restriction de  $\langle \tilde{U}^{(1)}(\beta, t, t') \rangle$  à ce sous-espace.

L'expression de  $\langle \tilde{M}_1(\beta, t) \tilde{M}_1(\beta, t_1) \rangle$  est obtenue simplement dans le cas où l'excitation est produite par une seule impulsion laser, dirigée le long du vecteur d'onde  $\vec{k}$ . On obtient alors :

$$\frac{d}{dt} \langle \tilde{V}^{(1)}(\beta, t, t') \rangle = \int_0^\infty d\tau \langle \chi(t) \chi^*(t - \tau) \rangle \begin{bmatrix} -1 & \exp i\Omega t & 0 \\ \exp -i\Omega t & -2 & \exp i\Omega t \\ 0 & \exp -i\Omega t & -1 \end{bmatrix} \quad (\text{IV.34})$$

où  $\Omega = \vec{k} \cdot (\vec{v} - \vec{v}')$

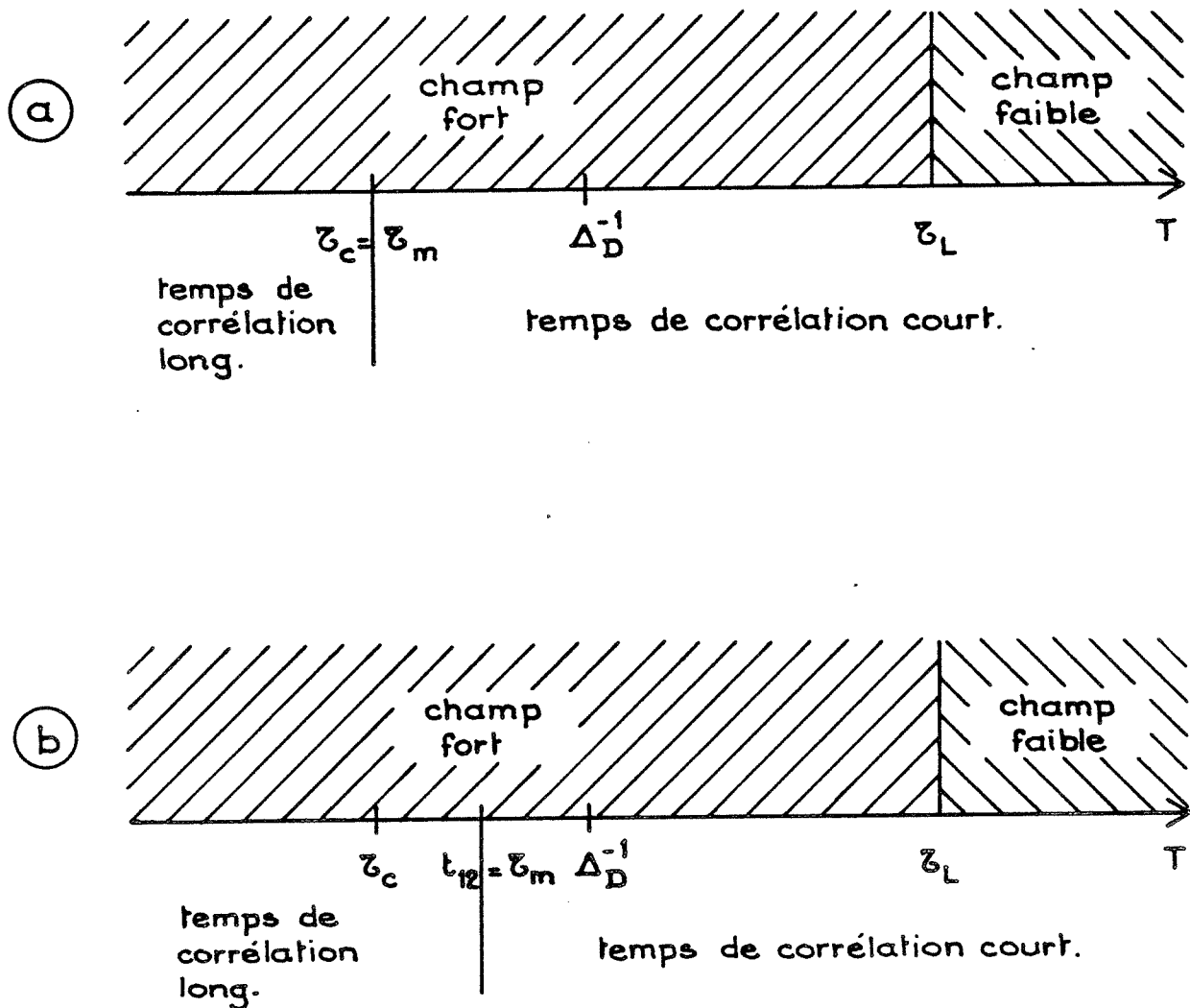


Figure 9 : Echelle des temps caractéristiques pour des champs stochastiques. la valeur de  $T$  situe le point de fonctionnement sur l'axe par rapport à  $\tau_c$ ,  $\tau_m$ ,  $\Delta_D^{-1}$  et  $\tau_L$  :

a) Champ large bande unique.

b) Deux champs large bande corrélés, retardés de  $t_{12}$ .

Le facteur  $\int_0^{\infty} d\tau \langle \chi(t) \chi^*(t-\tau) \rangle$  apparaît comme le taux de variation des quantités atomiques en présence du champ chaotique. D'après la définition de  $\chi(t)$  (Eq. IV.25) et celle de  $\tau_c$  (Eq. IV.27), on obtient :

$$\int_0^{\infty} d\tau \langle \chi(t) \chi^*(t-\tau) \rangle = [\chi^\circ(t)]^2 \tau_c \quad (\text{IV.35})$$

Le temps caractéristique de variation des quantités atomiques est l'inverse de leur taux de variation. On définit un temps caractéristique moyen de variation  $T$  de la façon suivante :

$$T = 1 / \left( \int \frac{dt}{\tau_L} [\chi^\circ(t)]^2 \tau_c \right) \quad (\text{IV.36})$$

Le facteur  $1/T$  apparaît comme le paramètre du développement perturbatif. Le régime de champ faible correspond à la situation où  $\tau_L/T \ll 1$  (Fig. 9). Deux termes successifs du développement perturbatif sont alors entre eux dans un rapport de l'ordre de  $\tau_L/T$ . Le régime de champ fort est atteint lorsque :

$$\tau_L/T > 1 \quad (\text{IV.37})$$

La frontière entre champ fort et champ faible dépend donc de toutes les caractéristiques du champ stochastique :  $\tau_L$ ,  $\tau_c$  et  $\chi$ .

## 6 - REGIME DE CHAMP FORT

Considérons la situation où le système évolue peu pendant le temps de corrélation  $\tau_m$  ce qui se traduit par la condition (Fig. 9) :

$$\tau_m < T \quad (\text{IV.38})$$

Le système conserve alors la mémoire de son état initial pendant un temps long durant le temps de corrélation  $\tau_m$  et une procédure de décorrélation standard [28, 29] permet de résoudre le système IV.23. Celui-ci s'écrit finalement :

$$\frac{d \langle \tilde{U}(\beta, t, t') \rangle}{dt} = \left( \int_0^{\infty} d\tau \langle \tilde{M}_1(\beta, t) \tilde{M}_1(\beta, t-\tau) \rangle \right) \langle \tilde{U}(\beta, t, t') \rangle \quad (\text{IV.39})$$

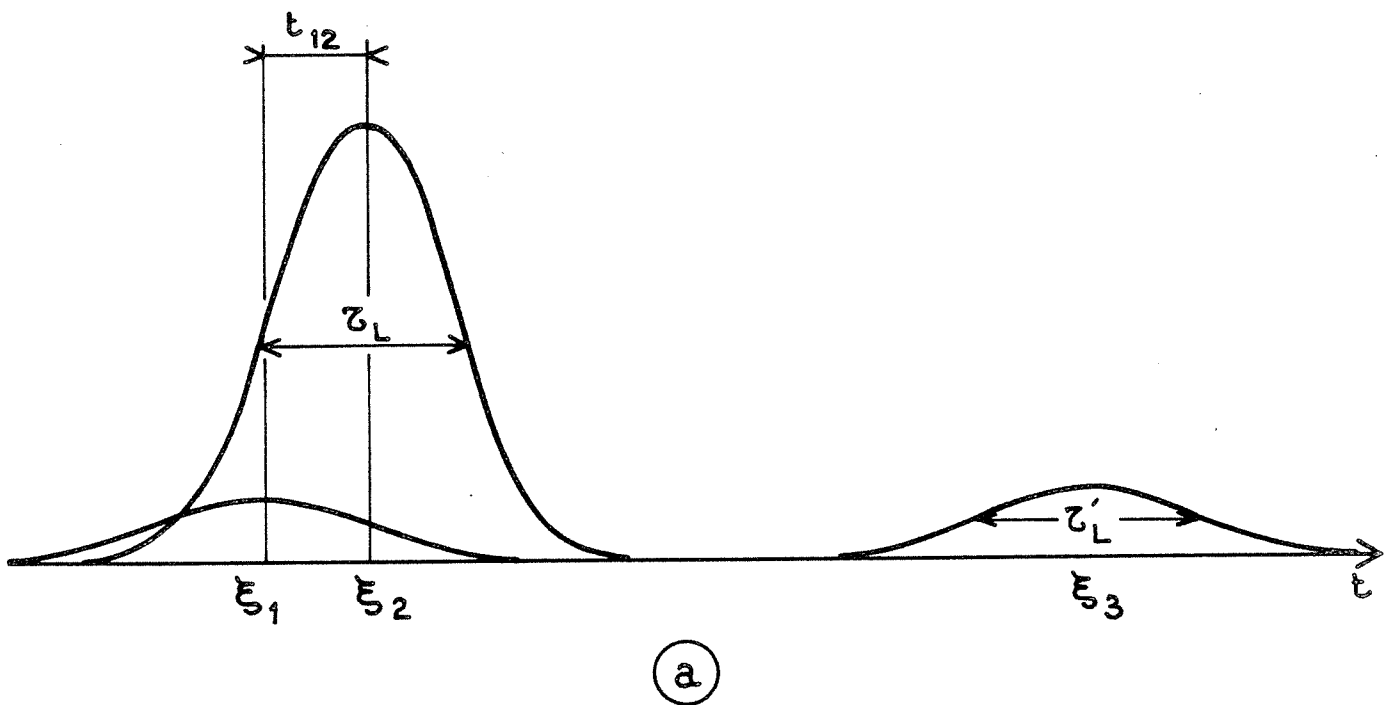
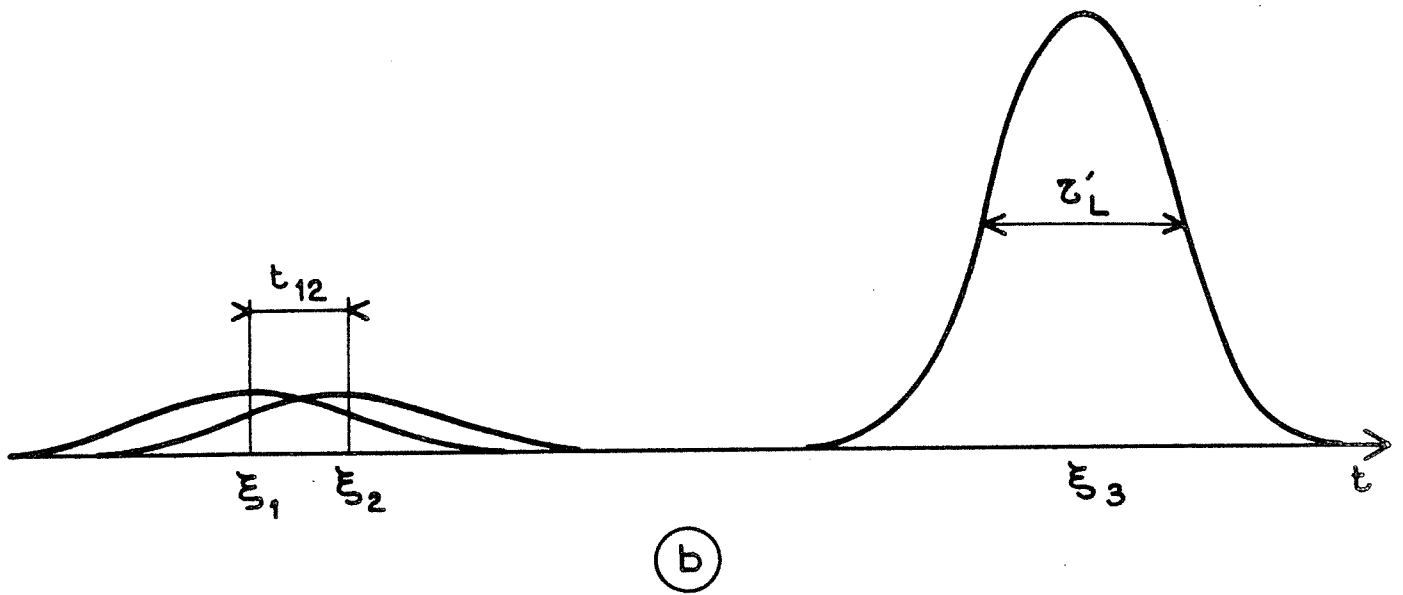


Figure 10 : Situations expérimentales de mélange à quatre ondes retardées dans le temps en champs large bande dont l'un intense :

- a) Inscription du réseau transitoire par deux impulsions corrélées large bande, dont l'une intense (Chap. IV § B-7-a).
- b) Lecture par une impulsion large bande intense (Chap. IV § B-7-b).

où on a utilisé la relation  $\langle \tilde{M}_1(\beta, t) \rangle = 0$  compte tenu de l'éq. IV.26. Sous cette forme l'évolution de la valeur moyenne de l'opérateur  $\langle \tilde{U}(\beta, t, t') \rangle$  est décrite par une simple équation différentielle dont les coefficients sont des fonctions régulières, lentement variables de  $t$ .

Lorsque le système atomique évolue rapidement pendant le temps de corrélation du processus d'excitation ( $T < \tau_m$ ), la procédure de décorrélation n'est plus valable. On ne sait alors résoudre l'équation IV.23 qu'au prix d'hypothèses supplémentaires sur les propriétés statistiques du champ. Dans l'hypothèse où le champ est un processus Markovien, une méthode assez générale de résolution de l'équation IV.23 peut être établie, ainsi que l'ont montré de nombreux travaux au cours de ces dernières années [27, 30, 31]. Le cas des processus non Markoviens est resté en revanche inexploré.

Dans le paragraphe suivant, nous analysons les traitements mathématiques du système IV.23 adaptés à la description des deux situations de champ fort couvertes par notre étude.

## 7 - ANALYSE DES CONFIGURATIONS DE CHAMP INTENSE DE MELANGE A QUATRE ONDES

### a) Inscription du réseau par deux impulsions corrélées dont l'une est intense (Fig. 10a)

Dans cette configuration, un des deux champs d'inscription corrélés,  $\xi_2$  par exemple, est intense, l'autre est faible ainsi que le champ de lecture. Les champs satisfont les conditions suivantes :

$$\frac{\tau_L}{T(\chi_1)}, \frac{\tau_L}{T(\chi_3)} \ll 1 \quad \text{et} \quad \frac{\tau_L}{T(\chi_2)} > 1$$

Les champs  $\xi_1$  et  $\xi_2$  se combinent dans le champ composite  $E_X^{12}(t)$  (Eq. IV.2) qui réalise l'inscription du réseau transitoire. Ce champ composite constitue un processus stochastique non Markovien.

Nous considérons la situation où  $\tau_c \ll T(\chi_2)$ . Le temps de corrélation  $\tau_m$  du processus s'identifie alors à  $t_{12}$  dès que l'écart entre impulsions est supérieur à  $\tau_c$ . Tant que  $t_{12}$  reste petit devant  $T(\chi_2)$ , le

processus est à court temps de corrélation et l'évolution du système est décrite par l'équation IV.39. Ce traitement cesse d'être valable quand  $t_{12}$  est supérieur à  $T$ . On se trouve alors confronté au problème de l'excitation par un processus non Markovien à long temps de corrélation (Fig. 9b). Ce problème n'ayant pas reçu jusqu'ici de solution, nous avons développé pour le résoudre une méthode diagrammatique originale décrite dans les articles n° 1 "Population grating induced by time-delayed, correlated, broad-band light pulses in the strong-field regime" et n° 2 "Optical coherent transient induced by time-delayed correlated broad-bandwidth pulses in the strong field regime". Elle permet d'analyser les effets de saturation induits par un champ intense, soit dans les signaux d'échos de photon simples, soit pour ces signaux de mélange à quatre ondes retardées dans le temps, en régime de champ intense. Une approche similaire du problème a été développée par Hartmann et Friedberg, de façon concomitante [32].

b) Lecture par une impulsion intense (Fig. 10b)

Les deux premières impulsions sont faibles et l'inscription du réseau de population est décrite par un développement perturbatif, l'impulsion de lecture est intense. Les champs satisfont les conditions suivantes :

$$\frac{\tau_L}{T(\chi_1)}, \frac{\tau_L}{T(\chi_2)} \ll 1, \quad \frac{\tau_L}{T(\chi_3)} > 1$$

Le temps de corrélation du processus d'excitation s'identifie à  $\tau_c$ . Si la condition de corrélation à court temps est satisfaite ( $\tau_c < T(\chi_3)$ ), la procédure standard de décorrélation (éq. IV.39) permet de décrire l'évolution du système (Fig. 9a). C'est ce cas qui a été étudié expérimentalement. Toutefois, dans le cas contraire où  $\tau_c > T(\chi_3)$  l'équation IV.23 est en principe soluble si le processus représenté par  $\chi_3(t)$  est Markovien [27]. Une fonction  $\chi_3(t)$  qui change abruptement de valeur à des instants répartis de façon aléatoire sur l'axe des temps mais séparés en moyenne par des intervalles  $\tau_c$  constitue un processus Markovien particulier qui a donné lieu à de nombreux travaux au cours de ces dernières années [31]. Il serait intéressant de résoudre l'équation IV.23 dans le cadre de ce modèle.



Les prévisions théoriques de nos modèles (articles 1, 2 et 5) permettent d'analyser les résultats expérimentaux décrits dans le paragraphe suivant. Un bilan de l'étude en champ fort conclut ce chapitre en soulignant les effets spécifiques d'un rayonnement large bande intense dans une configuration de mélange à quatre ondes.

## C - SITUATION EXPERIMENTALE

Ce paragraphe décrit le système atomique étudié, dont le choix satisfait les critères du cas modèle défini précédemment. Cette description est suivie d'une revue détaillée des dispositifs expérimentaux mis en oeuvre.

### 1 - CHOIX DU SYSTEME ATOMIQUE (Fig. 11)

L'expérience est réalisée en cellule. Le choix de la vapeur atomique répond à plusieurs impératifs. Le premier est relatif à la durée de vie des niveaux qui doit être suffisamment longue pour que la relaxation ne perturbe pas la mise en évidence des effets de puissance. Le second concerne la force de la transition sur laquelle on sonde les effets de puissance. Elle doit être suffisamment grande pour que le régime de champ fort soit aisément atteint. Le troisième suppose qu'il est possible de décrire le système comme un système à deux niveaux pour l'inscription du réseau ce qui permet une confrontation plus simple entre résultats expérimentaux et théoriques. Cela exclut les atomes de nombre de masse impair qui présentent une structure hyperfine.

Pour l'expérience où les effets de puissance sont observés lorsque l'impulsion sonde est intense, notre choix s'est porté sur le calcium ( $Z = 20$ ), de masse atomique 40 uma. Le réseau de population est produit en excitant, à l'aide de deux impulsions faisant un petit angle entre elles, la transition  $4s^2 \ ^1S_0 - 4s4p \ ^3P_1$ . La longueur d'onde de la transition est  $\lambda_1 = 657,2 \text{ nm}$ . La durée de vie du niveau  $4s4p \ ^3P_1$  est 0,55 ms. L'impulsion est linéairement polarisée. La transition étant du type  $J = 0 - J = 1$ , le système atomique est équivalent à un système à 2 niveaux. Si la troisième impulsion sonde le système sur cette même transition de force d'oscillateur très faible ( $g_i f_{ij} = 4,8 \cdot 10^{-5}$ ), le régime de champ fort est difficilement atteint avec les sources dont nous disposons.

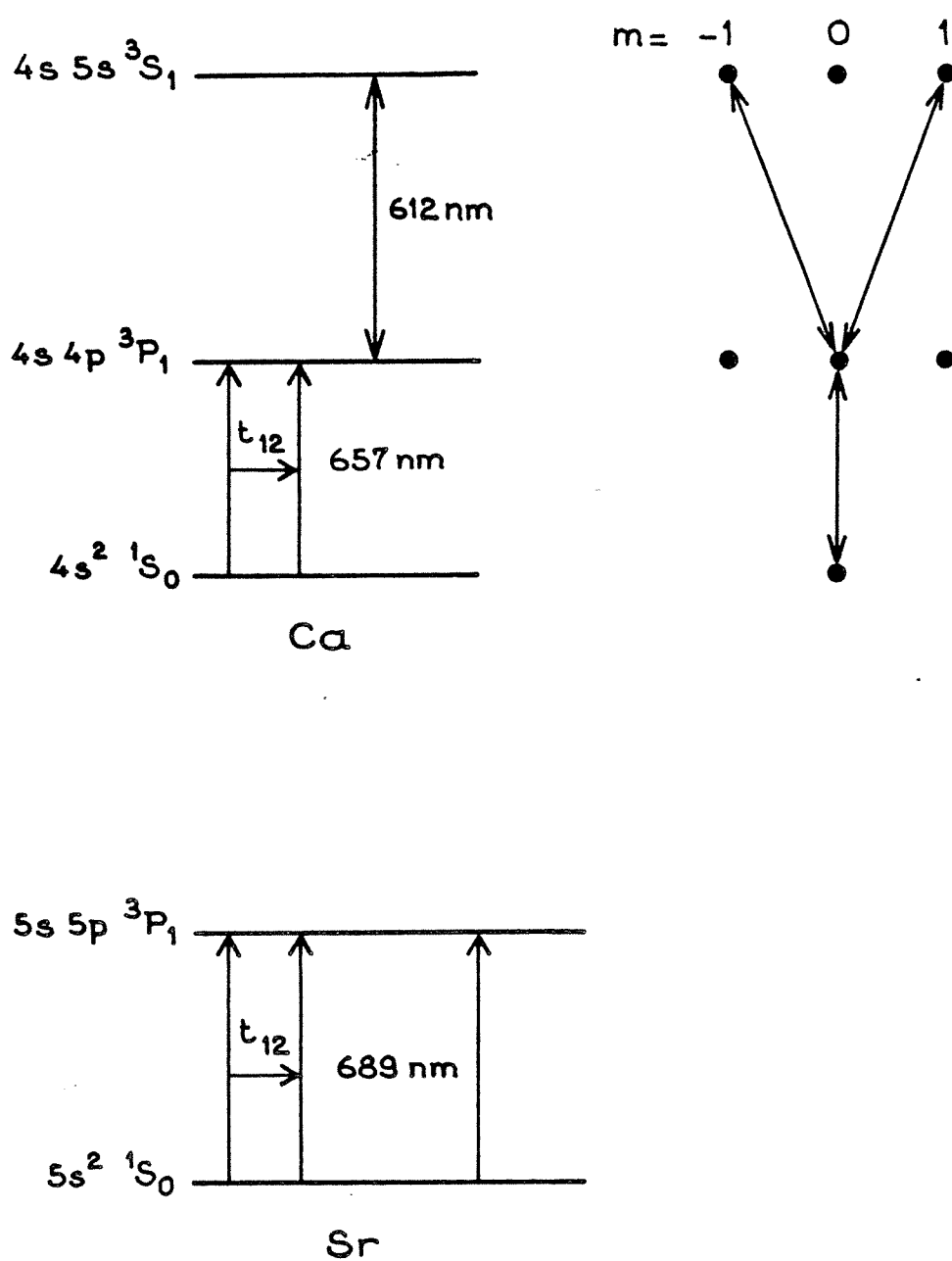


Figure 11 : Schémas d'excitation dans les vapeurs de calcium et de strontium :

- a) La lecture sur la transition  $4s\ 4p\ ^3P_1 - 4s\ 5s\ ^3S_1$  est réalisée par une onde intense. Sous niveaux Zeeman peuplés dans la configuration de polarisation retenue.
- b) L'inscription et la lecture se font sur la même transition ; une des impulsions d'inscription est intense.

L'impulsion de lecture qui sonde le réseau de population inscrit dans le niveau  $4\ s\ 4\ p\ ^3P_1$  est accordée à la transition  $4\ s\ 4\ p\ ^3P_1 - 4\ s\ 5\ s\ ^3S_1$  de plus forte probabilité ( $g_i\ f_{ij} = 0,483$ ). La longueur d'onde correspondante est 612 nm et la durée de vie du niveau supérieur est 11 ns (Fig. ). Les règles de sélection interdisent la transition  $J = 1 - J = 1$  entre les sous-niveaux  $m = 0$  et la polarisation de l'impulsion sonde est orthogonale aux deux précédentes. Le signal émis a la même polarisation que l'impulsion sonde, ce qui permet d'isoler le signal transitoire par rapport aux deux premières impulsions laser beaucoup plus intenses. La pression de vapeur de fonctionnement est choisie de façon à obtenir un niveau de signal optimal sans effets sensibles de propagation. La pression de vapeur est de l'ordre de  $10^{-4}$  Torr pour une température du four de  $470^\circ\text{C}$ . Dans ces conditions, l'épaisseur optique pour la transition à 657 nm est 0.009 et les deux premières impulsions se propagent sans déformation. La fraction de la population portée dans le niveau  $4\ s\ 4\ p\ ^3P_1$  est faible ( $\approx 10^{-3}$ ) et l'épaisseur optique pour la transition à 612 nm est sensiblement inférieure à l'unité.

Pour l'expérience où l'on s'intéresse aux effets de puissance lors de l'inscription du réseau, la transition excitée à partir du fondamental doit avoir une plus grande force d'oscillateur que précédemment. Nous avons choisi le strontium, dont on excite la transition  $5\ s^2\ ^1S_0 - 5\ s\ 5\ p\ ^3P_1$ , à  $\lambda = 689\ \text{nm}$ , pour l'inscription et la lecture du réseau. La force d'oscillateur ( $g_i\ f_{ij}$ ) vaut  $10^{-3}$  et elle est suffisante pour atteindre le régime de champ fort. D'autre part, la durée de vie du niveau  $5\ s\ 5\ p\ ^3P_1$  est de 21  $\mu\text{s}$  et la relaxation est négligeable pendant l'expérience dont la durée est de l'ordre de 30 ns. La température du four est  $420^\circ\text{C}$ , ce qui correspond à une pression de vapeur de  $2,7\ 10^{-4}$  Torr. L'épaisseur optique de l'échantillon est alors de l'ordre de l'unité.

## 2 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL (Fig. 12)

Nous analysons successivement les différents éléments du dispositif expérimental complet décrit sur la figure 12.

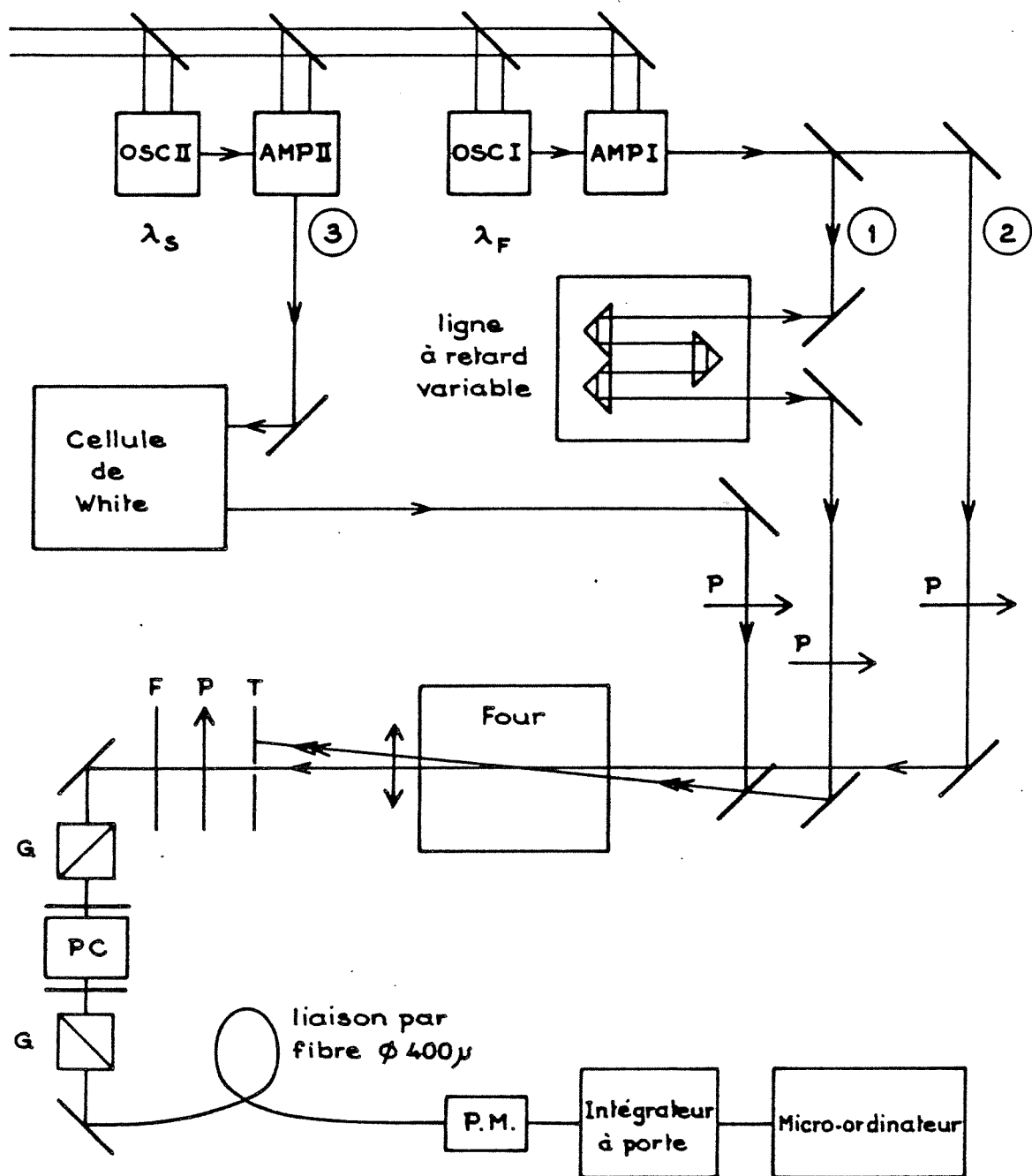


Figure 12 : Dispositif expérimental.

OSC I (II), AMP I (II) : oscillateur et amplificateur du laser à colorant qui fournit les impulsions d'inscription à  $\lambda_F$  (de lecture à  $\lambda_S$ ).

T : trou de filtrage, P : analyseur, F : filtre,  
 G : polariseur de Glan, P.C. : cellules de Pockels,  
 P.M. : photomultiplicateur.

### a) Sources lumineuses

Le montage comprend 2 sources laser à colorant. Elles sont pompées à l'aide d'impulsions doublées en fréquence, de durée  $\tau_p \simeq 12$  ns, provenant d'un laser Nd-YAG Q-switch, dont le taux de répétition est 15 Hz. Les lasers à colorant délivrent des impulsions de durée  $\tau_L \simeq 8$  ns, ayant une énergie maximale de l'ordre de 5 mJ.

La première source comprend un oscillateur de type Hänsch, suivi d'un amplificateur. Elle fournit les 2 premières impulsions de l'expérience. Dans le cas du calcium, la longueur d'onde de la radiation émise est  $\lambda_1 = 657$  nm. Le colorant utilisé est le DCM dans l'éthanol. Dans le cas de l'expérience sur le strontium, la longueur d'onde de la radiation émise est  $\lambda_1 = 689$  nm. Le colorant utilisé est du L.D.S. 698. On peut varier simplement la largeur spectrale d'un tel laser en masquant plus ou moins le réseau. Sans masque, elle est de 5 à 10 GHz. En masquant le réseau, on obtient des impulsions de largeur spectrale supérieure à 100 GHz, sans pertes notables de puissance après l'amplificateur.

La seconde source comprend un laser en incidence rasante suivi d'un amplificateur. Ce laser fournit le rayonnement sonde. Pour l'expérience réalisée dans le calcium, la longueur d'émission est  $\lambda_3 = 612$  nm et le colorant utilisé est la rhodamine 640. Dans l'expérience sur le strontium,  $\lambda = 689$  nm et le colorant utilisé est le L.D.S. 698.

### b) Sélection du signal

Le signal se propage dans la direction de la deuxième impulsion,  $\vec{k}_2$  qui, compte tenu des faibles angles utilisés, est proche des directions  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_3$ . Un rapport signal sur bruit satisfaisant n'est obtenu qu'au prix de l'élimination de trois faisceaux laser au niveau du détecteur.

L'élimination des impulsions 1 et 3 est réalisée de manière spatiale en utilisant la légère différence existant entre la direction de propagation de ces impulsions et celle du signal. l'angle entre ces impulsions est de l'ordre de 10 mrd, alors que le rayon des taches dans le four est de l'ordre du millimètre. Dans le plan focal d'une lentille, de

focale  $F = 30$  cm, l'image du signal et celle des impulsions 1 et 3 sont 2 taches séparées d'environ 3 mm, dont le rayon est de l'ordre de  $100 \mu\text{m}$  lorsque les impulsions sont limitées par diffraction. La sélection angulaire est très efficace.

Par contre, l'impulsion 2 n'est pas éliminée par ce procédé. Quand l'impulsion sonde excite une transition différente de celle excitée par les 2 premières impulsions l'élimination de l'impulsion 2 peut être réalisée spectralement et par polarisation (cas de l'expérience dans le calcium). Si l'impulsion est de même longueur d'onde que celles qui servent à l'inscription du réseau, l'élimination de la deuxième impulsion nécessite un obturateur électro-optique (cas de l'expérience sur le strontium). Le dispositif utilisé comprend l'ensemble de 2 cellules de Pockels entre analyseur et polariseur croisés. Le coefficient d'extinction dépend de la qualité spatiale du faisceau laser. Il atteint  $10^6$  dans notre expérience. La tension de commande pour l'ouverture de cellule de Pockels est de 4400 V, le cristal se comportant alors comme une lame  $\lambda/2$  pour  $\lambda = 612$  nm. Elle est obtenue grâce à un commutateur H.T., utilisant une chaîne de transistors en régime d'avalanche. Le commutateur est déclenché par le signal d'une photodiode à avalanche après qu'il ait traversé une ligne à retard passif qui permet d'ajuster l'instant d'ouverture du commutateur. Le temps de montée de l'obturateur est environ de 5 nanosecondes.

### c) Ligne à retard variable

Elle est utilisée pour produire le retard variable  $t_{12}$  entre les deux premières impulsions. Elle est composée d'un chariot mobile qui se déplace sur 2 barres d'acier inoxydable rectifiées, auquel sont fixés deux coins de cubes et d'une partie fixe sur laquelle est fixé un troisième coin de cube. On peut faire varier la largeur du domaine de retard exploré de 0,67 ns à 13 ns par pas de 0,67 ns. La position du chariot est repérée à l'aide de franges de Moiré et peut être déterminée à  $10 \mu\text{m}$  près, ce qui donne une résolution ultime de 130 fs dans la mesure de  $t_{12}$ . Un lecteur optique compte les franges et la position est codée sur 16 bits. Dans nos expériences nous n'avons retenu que les 14 bits de poids le plus fort, ce qui donne une résolution temporelle de 1 ps.

#### d) Acquisition

Le signal est détecté sur un photomultiplicateur rapide à 14 étages (Modèle RTC 2254B), suivi d'un intégrateur à porte variable (Modèle Stanford Research SRS 250) qui permet une mesure tir à tir du signal bien adaptée au traitement informatique. Cet intégrateur est déclenché à l'aide du signal d'une photodiode rapide éclairée par une fraction de l'impulsion du laser de pompe Nd-YAG. La valeur du signal, échantillonnée et bloquée, est alors acquise par un microordinateur IBM PC-XT.

La courbe représentative de l'intensité du signal en fonction du retard des 2 premières impulsions est obtenue en balayant la position de la ligne à retard. Ce balayage est asynchrone du tir laser. Pour conserver la résolution temporelle de la ligne à retard, on acquiert simultanément avec la valeur du signal, celle de la position du chariot.

La mémoire du microordinateur est divisée en segments de 64 Koctets. A raison de 2 octets par mesure, le nombre maximal de mesures stockées en mémoire est 32 000.

Lorsqu'on utilise la résolution maximale de l'écran de l'IBM (645 points en horizontal), la valeur de chaque canal est moyennée sur 50 tirs lasers. Le nombre de valeurs moyennées par canal peut être augmenté en diminuant la résolution horizontale.

#### e) Corrélation d'amplitude

Il est important dans ces expériences de pouvoir contrôler la validité des modèles de sources proposés et d'en déterminer les paramètres. En fait, les signaux observés dépendent essentiellement de la fonction de corrélation du champ et nous avons donc été amenés à construire un corrélateur d'amplitude qui nous permet de mesurer précisément le temps de corrélation des champs large bande. Son principe est décrit dans l'article n° 3 "An amplitude correlator for broadband laser source characterization".



### 3 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Nous décrivons dans ce paragraphe l'allure des signaux observés dans les deux configurations de champ intense étudiées. Ils sont obtenus en faisant varier le retard entre les deux premières impulsions pour différentes valeurs de l'intensité du champ fort considéré. Leur interprétation est reportée au paragraphe IV.D.

#### a) Impulsion de lecture intense

Dans cette expérience le temps de corrélation est voisin de 100 ps. La condition de champ fort ( $T < \tau_L$ ) est atteinte pour des valeurs de  $\chi_3$  supérieures à  $10^9 \text{ s}^{-1}$ . La valeur de l'élargissement inhomogène  $\Delta_D$  est  $4.7 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ . La figure 13 montre l'évolution du profil de la situation de champ faible (courbe 1,  $\chi_3^0 = 7.7 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ ,  $\phi_3 = 20 \text{ W/cm}^2$ ) à la situation de champ fort (courbe 3,  $\chi_3^0 = 7.7 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$ ,  $\phi_3 = 0.2 \text{ MW/cm}^2$ ). Le profil évolue de la courbe caractéristique du basculement du signal d'écho en champ faible au voisinage de  $t_{12} = 0$ , à une courbe symétrique autour de cette position, caractérisée par un effondrement du signal dans la région de  $t_{12}$  positifs. La quatrième courbe de la Fig. 13 représente la fonction d'autocorrélation d'intensité du champ de lecture.

#### b) Inscription du réseau par deux impulsions dont l'une est intense

Dans cette expérience,  $\Delta_D$  prend la valeur  $2.9 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ . Nous avons étudié l'évolution du signal à la fois en fonction de l'intensité du champ et en fonction du temps de corrélation  $\tau_c$  dans la limite des temps de corrélation courts ( $\tau_c < T$ ). Lorsque l'intensité du champ augmente apparaissent deux modifications sensibles du profil par rapport à la situation de champ faible (Fig. 14). Tout d'abord, on note un effacement progressif de la courbe de basculement observée au champ faible. Par ailleurs, dans la courbe apparaît un creux centré en  $t_{12} = 0$ . Nous avons vérifié que la largeur de ce creux est proportionnelle à  $\tau_c$  [Fig. 15].

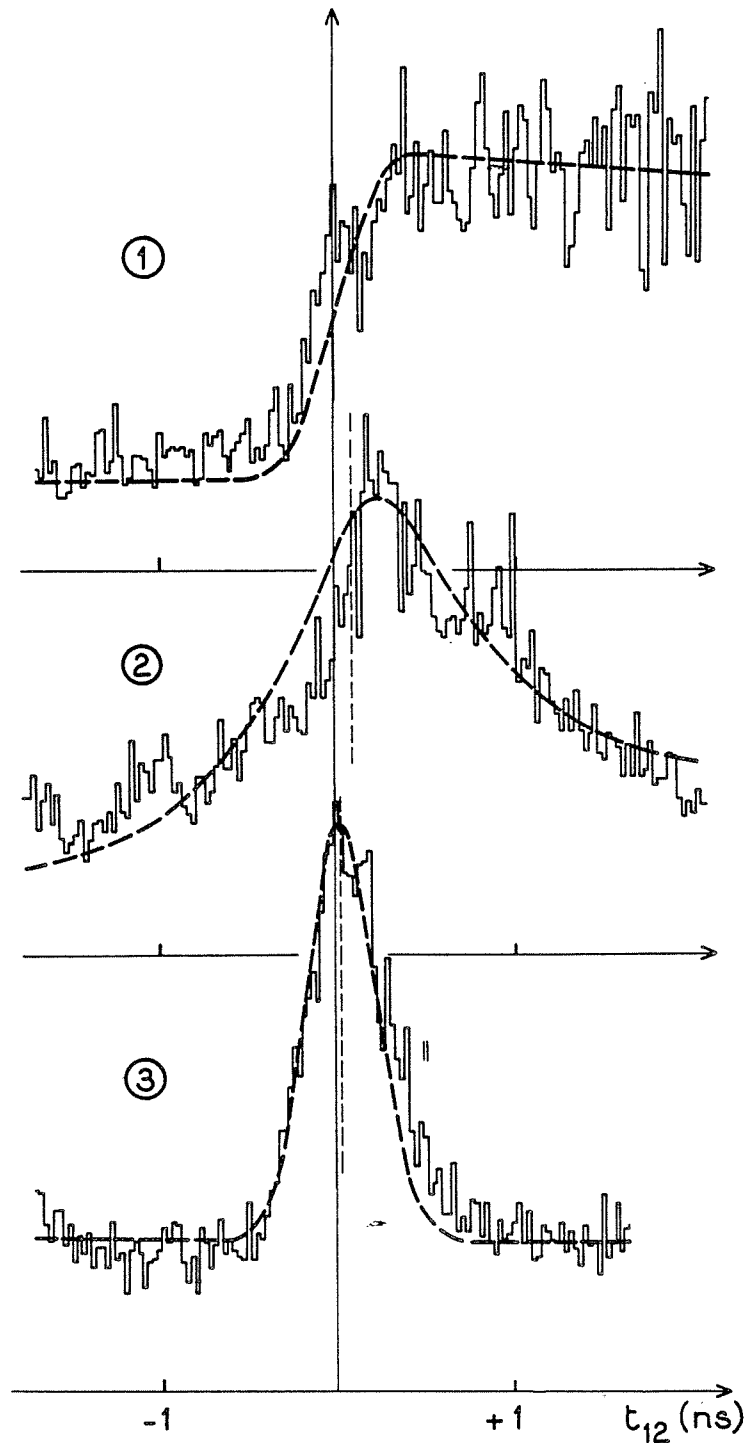


Figure 13 : Evolution du signal de la situation de champ faible à celle de champ fort lorsque l'intensité du faisceau de lecture augmente dans une vapeur de calcium.

Les courbes en traits pleins sont les courbes expérimentales :

- 1) Champ faible  $\phi_0 = 20 \text{ W/cm}^2$ ,  $\chi^2 \tau_c \tau_L < 1$
- 2) Champ fort  $\phi = 100 \phi_0$ ,  $\chi^2 \tau_c \tau_L > 1$  et  $\chi \tau_c < 1$
- 3) Champ très fort  $\phi = 10^4 \phi_0$ ,  $\chi^2 \tau_c \tau_L > 1$  et  $\chi \tau_c > 1$

Les courbes en pointillés (cas 1) et 2)) sont les courbes théoriques, la courbe en pointillés de la figure 3) représente le carré de la transformée de Fourier de la distribution initiale de vitesses ( $\Delta_D = 4.7 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ ).

Les axes verticaux en pointillés représentent les positions théoriques  $t_{12} = 0$ .

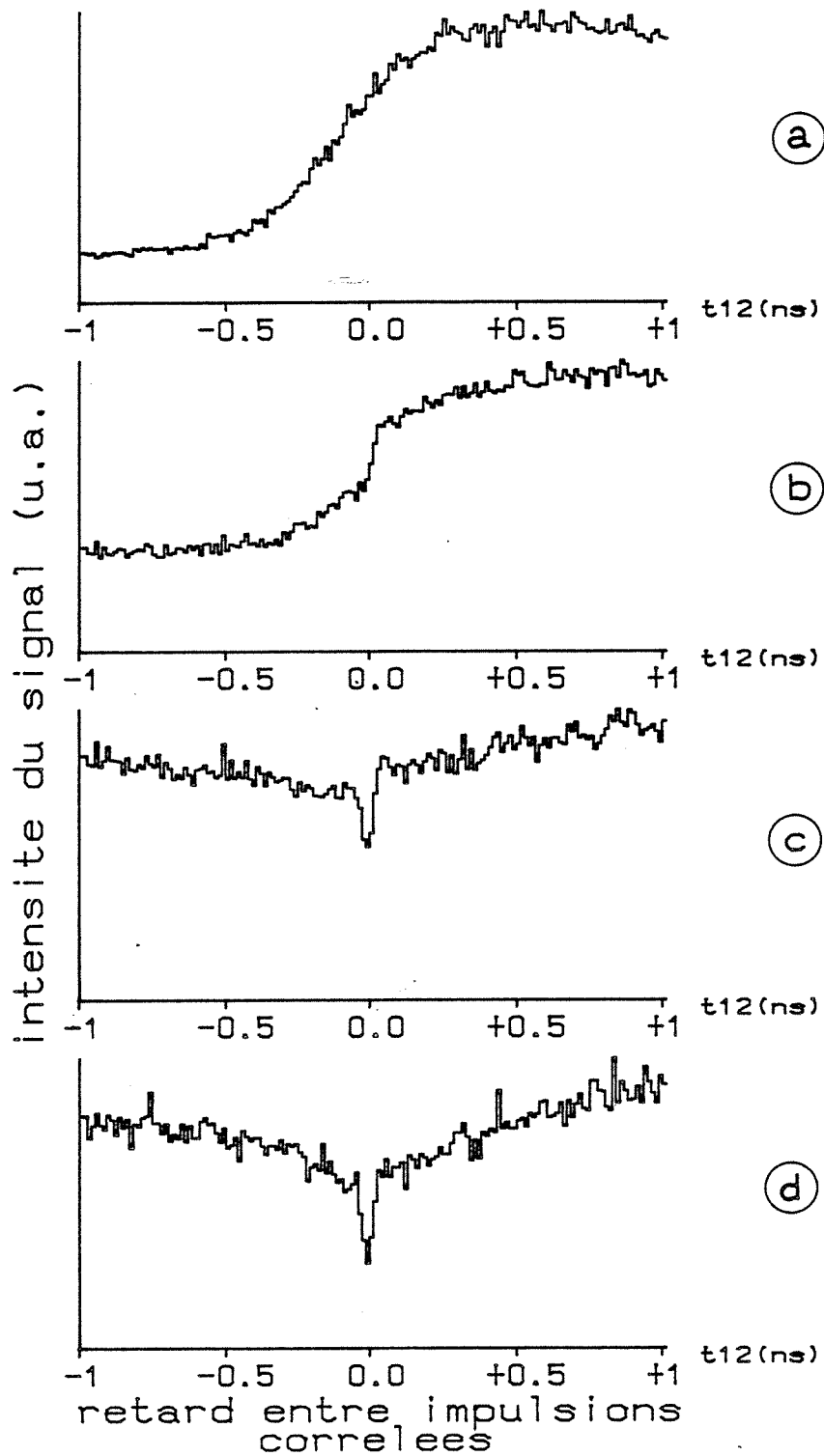


Figure 14 : Evolution du signal de la situation de champ faible à la situation de champ fort dans une vapeur de strontium en fonction de l'intensité de l'une des impulsions d'inscription.

Les courbes expérimentales représentent la variation de l'intensité du signal en fonction du retard  $t_{12}$  entre les impulsions :

$$\Delta_D = 5.2 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}, \tau_c = 15 \text{ ps}$$

a) Champ faible  $\phi_0 = 200 \text{ W/cm}^2$  ; b), c), d) champ fort :  
 b)  $\phi = 25\phi_0$  , c)  $\phi = 40\phi_0$  , d)  $\phi = 100\phi_0$

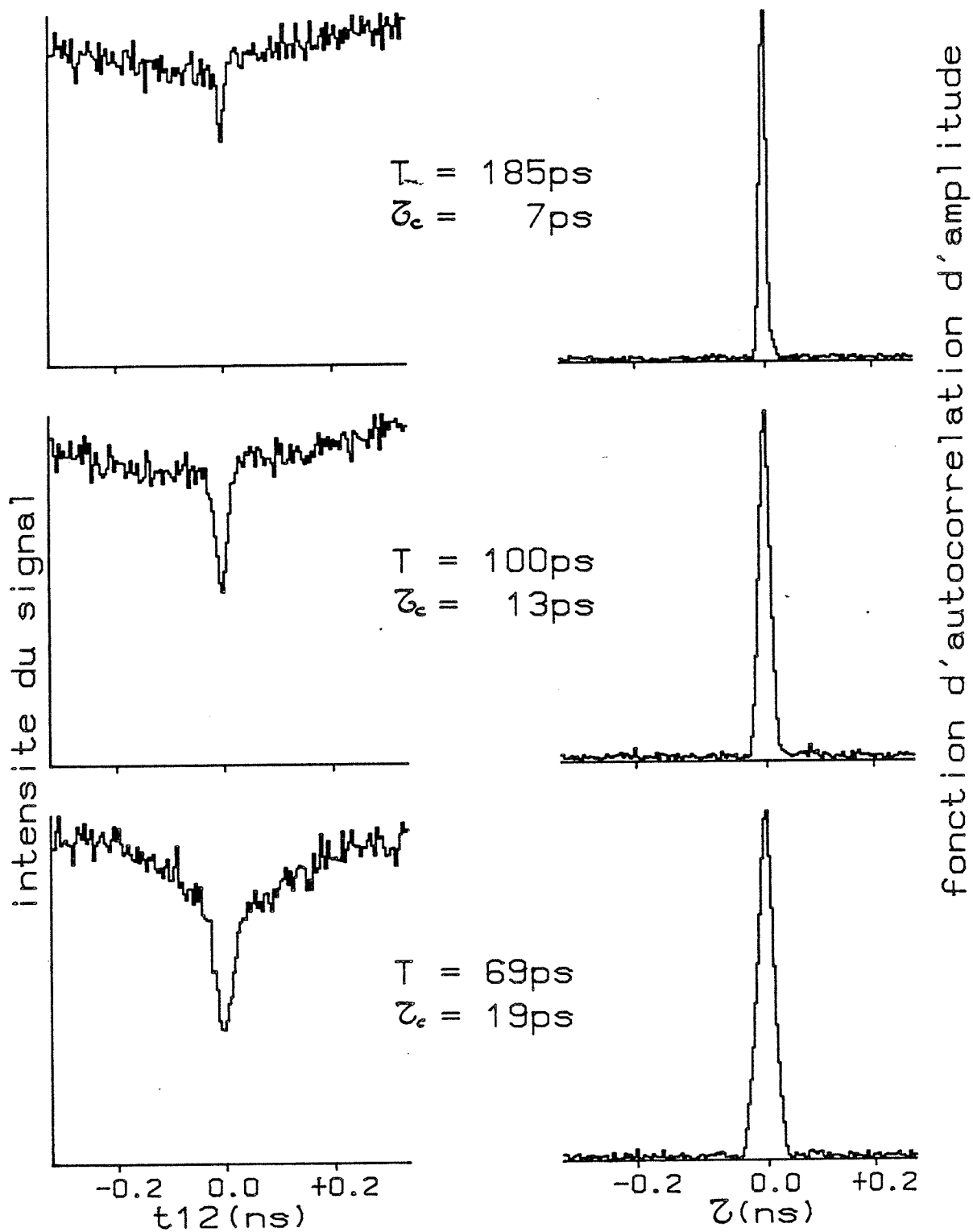


Figure 15 : Evolution du signal de champ fort dans la vapeur de strontium en fonction du temps de corrélation  $\tau_c$  du champ intense.

Les signaux sont obtenus pour une valeur fixée du champ fort correspondant à  $\phi = 2 \text{ kW/cm}^2$ .

## D - BILAN DE L'ETUDE EN CHAMP FORT

### 1 - IMPULSION DE LECTURE INTENSE - BLOCAGE DU DEPHASAGE INHOMOGENE

La configuration considérée est celle où le réseau transitoire, inscrit dans la population des niveaux atomiques par deux impulsions faibles, est sondé par une impulsion intense. Les aspects théoriques et expérimentaux de ce travail sont décrits dans l'article n° 4 "Inhibition of inhomogeneous dephasing by a strong optical field". Le signal de diffraction de l'onde sonde révèle un effet nouveau de *blocage de la phase relative des dipôles par un champ aléatoire intense*.

Une image géométrique de cet effet est proposée dans le § II.D de l'article n° 4. Nous en rappelons ici les traits essentiels. Dans la représentation de Bloch, l'évolution interne d'un système atomique à deux niveaux en présence d'une onde lumineuse est décrit par le mouvement de rotation d'un vecteur - le vecteur de Bloch - dans un espace abstrait. Soumis à un champ stochastique tel que :

$$\Delta_D T \ll 1$$

$$\tau_c \ll T$$

le vecteur de Bloch est affecté d'un mouvement chaotique qui se traduit par la marche du hasard de l'extrémité du vecteur sur une sphère. Le temps de diffusion qui caractérise ce mouvement n'est autre que T. Il est d'autant plus court que le champ est plus intense.

Le temps de diffusion T caractérise aussi l'évolution des grandeurs statistiques d'ordre 1, telles que la population moyenne des niveaux, qui s'expriment en fonction de la valeur moyenne des composantes du vecteur de Bloch. Les processus de fluorescence à résonance ou d'excitation multiphotonique sont décrits par l'évolution de ces grandeurs d'ordre 1. Il n'en est pas de même des signaux cohérents. Ceux-ci dépendent d'une grandeur statistique d'ordre 2, la corrélation entre les dipôles atomiques, dont l'évolution est liée au mouvement relatif des vecteurs de Bloch associés aux différents atomes. En champ faible, les vecteurs de Bloch associés aux classes de vitesse  $\vec{v}$  et  $\vec{v}'$  sont animés d'un

mouvement relatif de précession à la vitesse angulaire  $\Omega = \vec{k} (\vec{v} - \vec{v}')$  où  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde du champ excitateur. La vitesse de précession  $\Omega$  reflète le désaccord de fréquence  $\Omega/2\pi$  dont l'effet Doppler affecte les deux classes de vitesse. Lorsque le champ devient assez intense pour que  $\Omega T \ll 1$ , le mouvement relatif des vecteurs de Bloch peut être décrit comme un mouvement de diffusion de temps caractéristique  $(\Omega^{-1} (\Omega T)^{-1})$ , d'autant plus lent que le champ est plus intense. Au bout d'un temps  $t$  après leur formation par le champ intense, tous les dipôles conservent leur phase relative initiale pourvu que :

$$\Delta_D^2 T t \ll 1$$

En d'autres termes, la fonction de corrélation des dipôles conserve au bout d'un temps  $t$  sa valeur initiale si cette condition est satisfaite.

Ainsi qu'en témoigne l'équation II.19, les dipôles susceptibles de rayonner dans la direction  $\vec{k} + \vec{K}$  sont créés par l'impulsion sonde avec un facteur de phase  $\exp -i\vec{k}\vec{v} t_{12}$ . Ce facteur de phase reflète le décalage spatial dans la direction  $\vec{K}$ , des réseaux transitoires associés aux différentes classes de vitesse (Cf. Chapitre II § D). Lorsque l'impulsion sonde est peu intense ( $T \gg \tau_L$ ), la phase des dipôles évolue après leur création. Au bout d'un temps  $\tau$  après sa formation, un dipôle acquiert un facteur de phase  $\exp i\vec{k}\vec{v} \tau$ . Quelle que soit la valeur de  $t_{12} > 0$  (pourvu que  $\gamma_{ab} t_{12} \ll 1$ ), la phase totale  $\vec{k}\vec{v} (\tau - t_{12})$  s'annule en  $\tau = t_{12}$ . Tous les dipôles sont alors en phase. Ils émettent en phase sur un domaine de variation de  $\tau$  de l'ordre de  $\Delta_D^{-1}$ . Par raison de causalité, la valeur  $\tau$  de l'intervalle entre la formation des dipôles et l'émission du signal est positive. C'est donc seulement lorsque  $t_{12} > \Delta_D^{-1}$ , qu'un domaine de variation de  $\tau$  de largeur  $\Delta_D^{-1}$  est accessible autour de la position  $\tau = t_{12}$  et que l'intensité du signal peut atteindre sa valeur maximum. En résumé, l'intensité du signal émis dans la direction  $\vec{k} + \vec{K}$  est une fonction croissante de  $t_{12}$  qui atteint son maximum au voisinage de  $t_{12} = \Delta_D^{-1}$  et qui se maintient à ce niveau tant que  $\gamma_{ab} t_{12} \ll 1$ . Lorsque l'impulsion sonde est suffisamment intense ( $\Delta_D^2 T \tau_L \ll 1$ ), la phase relative des dipôles optiques est bloquée par le champ lumineux. Tout au long de l'impulsion sonde, la phase relative des classes de vitesse  $\vec{v}$  et  $\vec{v}'$  conserve sa valeur initiale  $\vec{k} (\vec{v} - \vec{v}') t_{12}$ . L'énergie  $\langle W_1(t_{12}) \rangle$  émise par les dipôles pendant la durée de l'impulsion

sonde est obtenue par sommation des contributions de tous les couples formés par les classes de vitesses. Chaque contribution élémentaire est proportionnelle à la fonction de corrélation figée à sa valeur initiale. On obtient :

$$\langle W_1(t_{12}) \rangle \propto \int d\vec{v} \int d\vec{v}' n(\vec{v}) n(\vec{v}') \exp - i\vec{k} \cdot (\vec{v} - \vec{v}') t_{12}$$

On reconnaît dans cette expression le module carré de la transformée de Fourier de la distribution de vitesse initiale. A la différence de celui qu'on observe en régime de champ faible, le signal induit par une impulsion sonde intense est une fonction décroissante de  $t_{12}$  qui, lorsque  $\Delta_D^2 T \tau_L \ll 1$ , s'éteint sur un domaine de variation de  $t_{12}$  de l'ordre de  $\Delta_D^{-1}$ .

La variation du signal en fonction de  $t_{12}$  est étudiée expérimentalement dans la vapeur de calcium à l'équilibre thermodynamique, pour différentes valeurs de l'intensité de l'impulsion sonde. Les profils expérimentaux sont en bon accord avec les prévisions théoriques (Fig. 13). Ils illustrent les propriétés de blocage de la phase relative des dipôles optiques par un champ stochastique intense. En raison de la brièveté de la séquence des impulsion excitatrices (quelques nanosecondes) ce processus à impulsion sonde intense semble adapté à l'analyse par échantillonnage d'une distribution de vitesse hors d'équilibre, telle que celle des produits de photofragmentation avant la thermalisation collisionnelle de leur mouvement de translation.

D'autre part, nous avons établi que le temps caractéristique d'évolution du système atomique est  $T$ . La durée de vie de la cohérence optique étant limitée par sa relaxation homogène au taux  $\gamma_{ab}$ , lorsque  $\gamma_{ab}^{-1} < \tau_L$ , la durée de l'exposition de la cohérence optique au champ n'est plus de l'ordre de  $\tau_L$  mais de l'ordre de  $\gamma_{ab}^{-1}$ . La condition de champ faible s'écrit alors :

$$\gamma_{ab} T \gg 1$$

Les mesures de relaxation sont donc réalisables dans ce domaine d'intensité. L'analyse de l'effet conjoint de la relaxation et du champ peut être étendue au-delà de ce domaine dans le cadre du formalisme que nous avons mis au point.

## 2 - INSCRIPTION DU RESEAU TRANSITOIRE PAR DEUX IMPULSIONS DONT L'UNE EST INTENSE

Dans cette configuration, le réseau transitoire est inscrit dans l'échantillon par deux impulsions corrélées, dont l'une est intense. L'autre impulsion d'inscription, ainsi que l'impulsion de lecture, vérifient la condition de champ faible :

$$T \ll \tau_L$$

L'impulsion intense satisfait la condition :

$$\tau_c \ll T$$

En s'appuyant sur l'image en champ faible exposée au Chapitre III et sur la représentation du vecteur de Bloch présentée au paragraphe précédent, il est tentant de prévoir l'effet de champ fort sur le réseau transitoire. Suivant l'image en champ faible, l'excitation par deux impulsions corrélées comprend une composante équivalente à l'excitation par deux impulsions jumelles de durée  $\tau_c$ , limitées par transformée de Fourier, séparées par un intervalle  $t_{12}$ . Suivant la représentation de Bloch, le vecteur représentatif du système atomique conserve, pendant le temps de diffusion  $T$ , la mémoire de son orientation initiale. On s'attend donc à ce que le système atomique garde au moins pendant le temps  $T$  la mémoire de la corrélation entre les deux impulsions excitatrices. On s'attend donc à ce que le signal produit par deux impulsions corrélées diffère du signal produit par deux impulsions non corrélées tant que  $t_{12} < T$ . Le temps de mémoire pourrait même dépasser  $T$  puisque, ainsi que nous l'avons vu au paragraphe précédent, un champ statistique intense ralentit le mouvement relatif des vecteurs de Bloch et entretient le souvenir que ces vecteurs conservent de leur position relative initiale.

Comme la cohérence atomique est le support de la mémoire de l'excitation entre les deux impulsions équivalentes de durée  $\tau_c$ , on prévoit que la relaxation intrinsèque de la cohérence est observable si la durée de vie intrinsèque  $\gamma_{ab}^{-1}$  est inférieure au temps de mémoire  $T$  fixé par le champ. Cette condition s'exprime sous la forme :

$$\gamma_{ab} T \gg 1$$



Elle est bien sûr seulement requise pour l'étude de relaxations telles que  $\gamma_{ab} \tau_L \gg 1$ , trop rapides pour que puisse être ménagé un intervalle d'évolution libre entre deux impulsions laser réellement séparées dans le temps.

L'analyse approfondie du problème s'appuie sur la résolution de l'équation d'évolution (IV.23). Ainsi qu'on l'a noté dans le § B de ce chapitre, le système atomique est soumis au champ total qui résulte de la composition des champs associés aux deux impulsions excitatrices corrélées. Ce champ composite constitue un processus stochastique non Markovien dont le temps de corrélation  $\tau_m$  est le plus grand des temps  $\tau_c$  et  $t_{12}$ . Tant que  $\tau_m \ll T$ , l'équation du mouvement se résout par la méthode standard de décorrélation (Cf. Eq. IV.39). Lorsque  $t_{12} > T$ , cette méthode ne s'applique plus (Fig. 9). La procédure diagrammatique que nous avons mise au point (article n° 2) permet alors d'établir l'expression du signal.

Selon cette étude théorique, le réseau produit par deux impulsions corrélées, dont l'une est telle que  $T < \tau_L$ , ne se distingue plus du réseau inscrit par des impulsions non corrélées, dès que  $t_{12} > \tau_c$ . Les résultats expérimentaux, présentés dans l'article n° 5 "Non Markovian strong field excitation of optical coherent transients", confirment les prévisions du calcul (Fig. 14, 15). Ils contredisent nettement l'image intuitive selon laquelle la mémoire de la corrélation entre impulsions devrait se conserver tant que  $t_{12} < T$ . La même image intuitive prévoit que la condition  $\gamma_{ab} T \gg 1$  serait suffisante pour observer la relaxation intrinsèque des cohérences atomiques en présence d'un champ fort. La réduction du temps de mémoire effectif à  $\tau_c$ , tel que nous l'avons observé, met en question cette prévision.



## CHAPITRE V

## C O N C L U S I O N

Ce travail est consacré à la mise en évidence et l'interprétation des effets de champ fort dans la formation des transitoires cohérents en lumière incohérente. Nous avons pour cela considéré le processus particulier de diffraction sur un réseau transitoire. Les deux premières impulsions sont supposées corrélées ce qui permet d'atteindre dans les mesures de relaxation une très haute résolution temporelle donnée par le temps de corrélation du champ de ces impulsions. Nous avons successivement analysé les situations où soit la phase d'inscription du réseau, soit la phase de lecture du réseau met en jeu une impulsion intense.

Dans la situation où la lecture du réseau transitoire est effectuée par un champ intense un blocage du déphasage inhomogène se produit : les phases relatives des dipôles de vitesses différentes sont gelées à leur valeur initiale durant l'irradiation laser. Une telle propriété permet un échantillonnage direct de la distribution de vitesse. Nous avons défini dans ce cas le domaine d'intensité du champ de lecture pour lequel le profil obtenu en faisant varier le retard entre impulsions corrélées, est celui de champ faible.

L'analyse de la phase d'inscription en régime de champ intense nous a conduit à résoudre un problème théorique original lié au caractère non-Markovien du champ de deux impulsions corrélées. Le résultat le plus surprenant de cette étude est qu'en l'absence de relaxation atomique le signal ne dépend plus de la corrélation des deux impulsions dès que leur décalage temporel est supérieur au temps de cohérence du champ de chaque impulsion.

Nous nous sommes intéressés dans ce travail à l'évolution temporelle du signal. La liaison avec les travaux antérieurs concernant la fluorescence à résonance serait assurée par une analyse spectrale du signal. Une telle étude du mélange à quatre ondes a été partiellement abordée par

G. Alber et al [36], de façon théorique, dans le cas du régime stationnaire. Deux ondes intenses, décorréelées, se propagent en sens inverse. On calcule la réflectivité du miroir par conjugaison de phase ainsi réalisé pour une onde sonde faible et monochromatique en fonction de la fréquence de cette onde sonde. Aucun élargissement inhomogène n'est pris en compte, l'effet du mouvement atomique n'étant discuté que de façon qualitative. Les effets de puissance mettant en jeu des impulsions corrélées ne sont pas abordés dans cette étude.

Ainsi que nous l'avons noté au fil du texte, l'étude des processus de relaxation en présence d'un champ stochastique intense prolonge naturellement le travail présenté dans ce mémoire. Dans une généralisation très directe des traitements que nous avons développés, la relaxation est prise en compte sous forme de taux de relaxation. Cette approche doit permettre de conclure sur la validité des mesures de relaxation en régime de champ fort. Cependant, c'est la description même de l'évolution atomique sous forme de taux de relaxation que la présence d'un champ intense rend parfois contestable, ainsi que l'ont montré De Voe et Brewer [33]. Ces auteurs ont en effet observé que la décroissance du signal de précession libre de l'ion  $\text{Pr}^{3+}$  dans une matrice de  $\text{LaF}_3$  était plus lente que celle attendue lorsque l'échantillon était excité à résonance par un champ intense. En champ faible le déphasage des ions  $\text{Pr}^{3+}$  est lié aux sauts aléatoires de leur fréquence de résonance induits par les basculements des spins nucléaires des atomes de fluor. La décroissance plus lente en champ fort peut s'interpréter comme une inhibition de ce déphasage induit par le mouvement des spins nucléaires [34]. Un phénomène analogue a été observé en vapeur atomique [35]. Les fluctuations de fréquence de résonance sont alors induites par les changements de vitesses collisionnels qui modifient le déplacement Doppler. Dans tous ces travaux le champ est monochromatique mais des effets analogues sont susceptibles d'apparaître en champ stochastique intense. La mesure de taux de relaxation ultrarapide est un enjeu important qui justifie une étude approfondie de ces phénomènes.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] R.G. BREWER and R.L. SHOEMAKER  
Phys. Rev. A 6, 2001 (1972)
- [2] R.G. BREWER and R.L. SHOEMAKER  
Phys. Rev. A 27, 631 (1971)
- [3] N.A. KURNIT, I.D. ABELLA, S.R. HARTMANN  
Phys. Rev. Lett. 13, 567 (1964)
- [4] P.F. LIAO, N.P. ECONOMOU, R.R. FREEMAN  
Phys. Rev. Lett. 39, 1473 (1977)
- [5] S. ASAKA, H. NAKATSUKA, M. FUJIWARA, M. MATSUOKA  
Phys. Rev. A 29, 2286 (1984)
- [6] N. MORITA, T. YAJIMA  
Phys. Rev. A 30, p. 2525 (1984)
- [7] M. FUJIWARA, R. KURODA, H. NAKATSUKA  
J. Opt. Soc. Am. 2, 1634 (1985)
- [8] K. KUROKAWA, T. HATTORI, T. KOBAYASHI  
Phys. Rev. A 36, 1298 (1987)
- [9] C. LECOMPTE, G. MAINFRAY, C. MANUS, F. SANCHEZ  
Phys. Rev. Lett. 32, 265 (1974)
- P. AGOSTINI, A.T. GEORGES, S.S. WHEATLEY, P. LAMBROPOULOS,  
M.D. LEVENSON  
J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 11, 1733 (1978)
- P. ZOLLER  
Phys. Rev. A 19, 1151 (1979)

- [10] H. NAKATSUKA, J. OKADA, M. MATSUOKA  
J. Phys. Soc. of Japan 37, 1406 (1974)
- P. AVAN, C. COHEN-TANNOUDJI  
J. Phys. B Atom. Molec. Phys. 10, 155 (1977)
- [11] J.E. GOLUB, T.W. MOSSBERG  
J. Opt. Soc. Am. B 3, 554 (1986)
- [12] Laser Physics ; M. SARGENT, M.O. SCULLY, W.E. LAMB  
Addison-Wesley Publishing Compagny (1974)
- [13] Optical Resonance and two level atoms  
L. ALLEN, J.H. EBERLY  
Wiley Interscience Publication (1975)
- [14] Classical electrodynamics J.D. JACKSON, Wiley (1975)
- [15] L'influence de la forme de l'échantillon sur l'émission cohérente a été en particulier étudiée en relation avec les expériences de superadiance.  
N.E. REHLER, J.H. EBERLY  
Phys. Rev. A 3, 1735 (1971)
- [16] R.G. BREWER, E.L. HAHN  
Scientific American 251, 42 (1984)
- [17] T.S. ROSE, M.D. FAYER  
Chem. Phys. Lett. 117, 12 (1985)
- [18] D.W. PHILLRON, D.J. KUIZENGA, A.E. SIEGMAN  
Appl. Phys. Lett. 27, 85 (1975)
- [19] Laser Induced Dynamic Gratings  
H.J. EICHLER, P. GUNTER, D.W. POHL  
Springer-Verlag. Berlin, Heidelberg, New-York, Tokyo (1986)

- [20] Le processus d'écho stimulé a été mis en évidence pour la première fois dans les échos de spin  
E.L. HAHN  
Phys. Rev. 80, 580 (1950)
- Plus récemment, des expériences d'échos de photons stimulés ont été réalisées  
T. MOSSBERG, A. FLUSBERG, R. KACHRU, S.R. HARTMANN  
Phys. Rev. Lett. 42, 1665 (1979)
- M. FUJITA, H. NAKATSUKA, H. NAKANISHI, M. MATSUOKA  
Phys. Rev. Lett. 42, 974 (1979)
- [21] W.H. HESSELINK, M.A. WIERSMA  
Phys. Rev. Lett. 43, 1991 (1979)
- [22] T. YAJIMA, Y. TAIRA, J. Phys. Soc. Jap. 47, 1620 (1979)
- M.J. EICHTER, U. KLEIN, D. LANGHANS  
Appl. Phys. 21, 215 (1980)
- [23] M. DEFOUR, J.C. KELLER, J.L. LE GOUËT  
J. Opt. soc. Am. B 3, 544 (1986)
- [24] J.E. GOLUB, T.W. MOSSBERG  
Opt. Lett. 11, 431 (1986)
- [25] M. DEFOUR, J.C. KELLER, J.L. LE GOUËT  
Phys. Rev. A 36, 5226 (1987)
- [26] C. RADZEWICZ, Z.W. LI, M.G. RAYMER  
Phys. Rev. A 37, 2039 (1988)
- [27] N.G. VAN KAMPEN  
Stochastic Processes in Physics and Chemistry (North-Holland, Amsterdam, 1981)

- [28] A. BRISSAUD and U. FRISCH  
J. Math. Phys. 15, 524 (1974)
- [29] R.C. BOURRET,  
Nuovo Cimento 26, 1 (1962)
- [30] Des solutions analytiques peuvent être simplement obtenues dans le  
cadre d'un modèle de diffusion de phase pour le champ  
G.S. AGARWAL  
Phys. rev. A 18, 1490 (1978)  
K. WODKIEWICZ  
Phys. Rev. A 19, 1686 (1979)
- Des solutions approchées existent pour des modèles plus généraux de  
champ  
P. ZOLLER, G. ALBER, R. SALVADOR  
Phys. Rev. A 24, 398 (1981)  
R. GRIGOLINI, L.A. LUGIATO, R. MANNELA and P.V.E.  
Mc CLINTOCK, M. MERRI, M. PERNIGO  
Phys. Rev. A 38, 1966 (1988)
- [31] B.W. SHORE  
J. Opt. soc. Am. B 1, 176 (1984)
- [32] R. FRIEDBERG and S.R. HARTMANN  
J. Phys. B At. Molec. Opt. Phys. 21, 683 (1988)
- [33] R.G. DE VOE, R.G. BREWER  
Phys. Rev. Lett. 50, 1269 (1983) ; 52, 1354 (1984)
- [34] P.R. BERMAN, R.G. BREWER  
phys. Rev. A 32, 2784 (1985)
- [35] A.G. YODH, J. GOLUB, N.W. CARLSON, T.W. MOSSBERG  
Phys. Rev. Lett. 53, 659 (1984)
- [36] G. ALBER, J. COOPER, P. EWART  
Phys. Rev. A 31, 2344 (1985)



## Article 1



# Population grating induced by time-delayed, correlated, broadband light pulses in the strong-field regime

P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, and J.-L. Le Gouët

Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

Received November 9, 1987; accepted February 12, 1988

Formation of coherent transients by incoherent light pulses has stimulated renewed interest in time-resolved coherent spectroscopy. Standard theories conveniently account for the weak-field regime experiments, but they fail to interpret the power effects that occur during resonant excitation of a sample by time-delayed, correlated, broadband laser pulses. We report on a new approach to this problem. We have been able to determine the expectation value of the population grating induced by two time-delayed, correlated, broadband light pulses under the limitation that one of the fields is weak. We have developed a diagrammatic technique that seems promising for the calculation of actual coherent-transient signals in the strong-field regime.

## 1. INTRODUCTION

Recent developments of optical coherent-transient spectroscopy require the achievement of extremely short time resolution in experiments in which the sample is excited by broadband, long laser pulses.<sup>1-8</sup> It has been shown that the time-resolution limit is governed by the correlation time  $\tau_c$  of the excitation light and not by the pulse duration  $\tau_L$ . Because the correlation time identifies with the inverse spectral width of the pulse, the condition  $\tau_c \ll \tau_L$  is fulfilled by broadband, long pulses. We can take advantage of this property to measure fast decay rates<sup>1-6</sup> and to perform coherent excitation over wide spectral domains.<sup>7-9</sup>

Until those broadband experiments were performed, most research in the field of time-resolved coherent spectroscopy focused on the investigation of atomic system evolution in the course of radiation-free time intervals. In these endeavors coherent processes such as photon echo,<sup>10</sup> time-delayed four-wave mixing,<sup>11</sup> free-induction decay,<sup>12</sup> and coherent Raman scattering<sup>13</sup> were involved. The use of broadband, correlated laser pulses aims at performing experiments on a much shorter time scale, in which the sample evolution is monitored along time intervals that are shorter than the laser-pulse duration. This means that interaction with light interferes with the decay process under investigation. In the weak-field limit the two effects have been properly disentangled.<sup>3</sup> As a consequence, all the broadband experiments mentioned above were performed under weak-field conditions. However, comprehension of the strong-field situation would open the way to experimental conditions from which a larger signal intensity is expected to be attainable. This problem has been treated approximately in some publications,<sup>9,14</sup> and this paper contributes to its understanding. (After completing this paper, we learned of an imminent publication by Friedberg and Hartmann<sup>15</sup> that contains many of the same ideas.)

In the weak-field regime, theoretical expressions of the signal are conveniently derived from the perturbative solution of the optical Bloch equations.<sup>3</sup> In the strong-field regime solutions exist when excitation is provided by uncor-

related, broadband light pulses.<sup>15</sup> This situation is illustrated by a stimulated photon-echo<sup>16,17</sup> experiment in which three different lasers are used to produce the three broadband excitation pulses. The same theoretical treatment applies when correlated, broadband pulses are used, provided that there is no delay between them. This situation is illustrated by a wave-mixing experiment<sup>11</sup> in which at least two excitation pulses issue from the same source. To the best of our knowledge, no exact results have been obtained for excitation by overlapping time-delayed, strongly correlated, broadband pulses, which are involved in recent experiments.<sup>9,14</sup>

In this paper we consider resonant excitation of a two-level-system vapor by two angled laser beams. Such irradiation results in the engraving of a spatial grating inside the population of the two levels connected by the optical transition. Diffraction of a probe beam by this grating underlies the formation of the signal in various coherent processes, such as phase conjugation, four-wave mixing, and photon echo. We determine the expectation value of the grating. We assume that excitation is conveyed by two time-delayed, broadband laser pulses that issue from the same source. We then describe saturation effects under the restrictive condition that one of the pulses is weak. To achieve this calculation we develop a diagram representation that might help to determine other quantities and to describe several coherent processes. In Section 2 the needed assumptions on the physical system are specified. Calculation of the grating amplitude is performed in Section 3. The results are discussed in Section 4, and extension of the diagram representation is considered in Section 5.

## 2. PHYSICAL SYSTEM

A broadband optical field is a stochastic function of time. Its stochastic character is measured by the coherence time of the light,  $\tau_c$ . A statistical average is involved in the definition of this quantity. Indeed, the coherence time of  $f(t)$  is the width of the autocorrelation function  $\langle f(t)f^*(t - \tau) \rangle$ ,

which is the expectation value of  $f(t)f^*(t - \tau)$ . Such a definition of  $\tau_c$  suggests that in an experiment in which a broadband field is used the data should be ensemble averaged to make sense. Whatever signal one observes, its expectation value may be expressed in terms of statistical moments of atomic quantities. Photoionization and photo-induced fluorescence-averaged signals in a vapor are functions of averaged level populations  $\langle n_i(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \rangle$ ,<sup>18,19</sup> where  $n_i(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$  denotes the atomic density in level  $i$  at position  $\mathbf{r}$  and at velocity  $\mathbf{v}$ . Coherent transients are usually emitted in an optical transition between two atomic levels  $a$  and  $b$ . Then the expectation value of the signal emitted by a gas sample may be expressed in terms of the second-order statistical moment of the atomic coherence  $\langle \rho_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \rho_{ba}(\mathbf{r}', \mathbf{v}', t) \rangle$ , where  $\rho_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$  stands for the two-level system density-matrix element.

The stimulated photon echo is a coherent transient that results from resonant interaction of the sample with a three-pulse sequence.<sup>16,17</sup> When the third pulse is not correlated with the first two excitation pulses, the signal is a function of the second-order moment of the population difference  $\langle n_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) n_{ab}(\mathbf{r}', \mathbf{v}', t) \rangle$ ,<sup>14</sup> where  $n_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = n_b(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) - n_a(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ .

In the present paper a two-level system vapor is resonantly excited by a sequence of two correlated angled-beam laser pulses. A spatial grating is carved by the pulses inside the level-population difference  $n_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ . The Bragg vector of the grating is the difference  $\mathbf{K} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  between the wave vectors of the excitation pulses. The population grating is expanded in a series of its Fourier components:

$$n_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \hat{n}_{ab}(p; \mathbf{v}, t) \exp - ip\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}. \quad (1)$$

Because one pulse is weak the grating reduces to its fundamental components  $\hat{n}_{ab}(\pm 1; \mathbf{v}, t)$ . This paper focuses on the calculation of  $\langle \hat{n}_{ab}(\pm 1; \mathbf{v}, t) \rangle$  in the frame of a definite model of the stochastic field.

The pulses are represented by classical electric fields

$$E_i(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_i(t) \cos[\omega t - \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} + \varphi_i(t)], \quad (2)$$

where  $\mathcal{E}_i(t)$  and  $\varphi_i(t)$  are slowly varying functions of time with regard to optical oscillations. Coupling of the field with the atomic system is characterized by the Rabi frequency

$$\chi_i(t) = \mu_{ab} \mathcal{E}_i(t) \exp[i\varphi_i(t)] / \hbar, \quad (3)$$

where  $\mu_{ab}$  is the transition dipole moment. The random character of the field is contained in  $\chi(t)$ . We assume that  $\chi(t)$  may be expressed as

$$\chi_i(t) = \chi_i^0(t) \epsilon_i(t), \quad (4)$$

where  $\chi_i^0(t)$  is a slowly varying envelope and  $\epsilon_i(t)$  is a stationary random function. The following equations are satisfied:

$$\begin{aligned} \langle \epsilon_i(t) \rangle &= 0, \\ \langle \epsilon_i(t) \epsilon_i^*(t - \tau) \rangle &= g(\tau), \\ \langle \epsilon_i(t) \epsilon_i(t - \tau) \rangle &= 0, \end{aligned} \quad (5)$$

where the autocorrelation function  $g(\tau)$  is normalized in such a way that  $g(0) = 1$ . We set

$$\tau_c = \int_0^{\infty} g(\tau) d\tau. \quad (6)$$

The mean pulse intensity is proportional to  $\langle |\chi(t)|^2 \rangle = \langle |\chi^0(t)|^2 \rangle$ . Thus  $|\chi^0(t)|^2$  appears to be the envelope of the pulse intensity; its width is  $\tau_L$ . We assume that  $\tau_c \ll \tau_L$ . In addition, the random process is assumed to be Gaussian. Thus we may use the moment factorization procedure

$$\begin{aligned} \langle \epsilon(t_1) \dots \epsilon(t_n) \epsilon^*(t_{n+1}) \dots \epsilon^*(t_{2n}) \rangle \\ = \sum_P \prod_{j=1}^n \langle \epsilon(t_j) \epsilon^*[t_{P(n+j)}] \rangle, \end{aligned} \quad (7)$$

where the sum runs over the permutations of  $t_{n+1} \dots t_{2n}$ .

With these assumptions the field is completely defined by the envelope  $\chi^0(t)$  and by the autocorrelation function of  $\epsilon(t)$ . The characteristic time constants of those functions need to be positioned with regard to the atomic time constants. We assume that the atomic coherence decay rate  $\gamma_{ab}$  and the population decay rates  $\gamma_a$  and  $\gamma_b$  fulfill the following conditions:

$$\gamma_{ab} \tau_c \ll 1, \quad \gamma_a \tau_L \ll 1, \quad \gamma_b \tau_L \ll 1.$$

The atomic system is assumed to be affected little by the field during a time interval  $\tau_c$ . This requirement guarantees that the system keeps some memory of its excitation state on a time scale much larger than the correlation time. This condition reads as  $\chi^0(t) \tau_c \ll 1$ .<sup>20</sup>

The population grating induced by a two-pulse excitation in an angled-beam configuration is rapidly erased by atomic motion. In order that this grating obliteration be negligible, we assume that the grating spatial period is much larger than the mean distance traveled by an atom between beginning of illumination and probing. In addition, we assume that this time interval is much smaller than  $\gamma_a^{-1}$  and  $\gamma_b^{-1}$ .

Within the frame of this model we may proceed to the calculation of the grating amplitude.

### 3. CALCULATION OF THE GRATING AMPLITUDE

The level-population difference satisfies the following integrodifferential equation, which is derived from the optical Bloch equation<sup>14</sup>:

$$\begin{aligned} \dot{n}_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = -\text{Re} \left[ \chi(\mathbf{r}, t) \int_{-\infty}^t dt' \chi^*(\mathbf{r}, t') \right. \\ \left. \times n_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t') \exp - (i\Delta + \gamma_{ab})(t - t') \right], \end{aligned} \quad (8)$$

where  $\chi(\mathbf{r}, t) = \chi_1(t) \exp i\mathbf{K}\mathbf{r}/2 + \chi_2(t) \exp(-i\mathbf{K}\mathbf{r}/2)$ ,  $\mathbf{K} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ ,  $\Delta = \mathbf{v} \cdot (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2)/2$ .

The solution to Eq. (8) may be expanded in series. The  $m$ th term of the expansion includes  $2m$  time-ordered instantaneous couplings with the field, which occur at time  $t_1 \dots t_{2m}$ . The Rabi frequency  $\chi_2(t)$  satisfies the weak-field condition  $(\chi_2^0)^2 \tau_c \tau_L \ll 1$ .<sup>10</sup> Then, to lowest order in  $\chi_2(t)$ , the fundamental components of the grating involve a single interaction with  $\chi_2(t)$ . In the  $m$ th term of the expansion, interaction with  $\chi_2(t)$  may occur at any of the  $2m$  coupling times. Thus the  $m$ th term may be expanded into  $m$  components.

Each  $n$ -labeled component refers to coupling with  $\chi_2(t)$  at time  $t_{2n}$  and at time  $t_{2n-1}$ . The resulting expansion of  $\hat{n}_{ab}(1; \mathbf{v}, t)$  reads as

$$\hat{n}_{ab}(1; \mathbf{v}, t) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=1}^m (-)^m A_{mn}(\mathbf{v}, t) n_{ab}^{(0)}(\mathbf{v}),$$

$$\hat{n}_{ab}(-1; \mathbf{v}, t) = \hat{n}_{ab}^*(1; \mathbf{v}, t), \quad (9)$$

where

$$A_{mn}(\mathbf{v}, t) = \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{2n-2}} dt_{2n-1} \int_{-\infty}^{t_{2n-1}} dt_{2n}$$

$$\times \dots \int_{-\infty}^{t_{2m-2}} dt_{2m-1} \int_{-\infty}^{t_{2m-1}} dt_{2m}$$

$$\times \text{Re}[\chi_1(t_1) \chi_1^*(t_2) \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t_1 - t_2)] \dots$$

$$\times [1/2 \chi_2(t_{2n-1}) \chi_1^*(t_{2n}) \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})$$

$$\times (t_{2n-1} - t_{2n}) + 1/2 \chi_1^*(t_{2n-1}) \chi_2(t_{2n})$$

$$\times \exp(i\Delta - \gamma_{ab})(t_{2n-1} - t_{2n})] \dots \times \text{Re}[\chi_1(t_{2m-1})$$

$$\times \chi_1^*(t_{2m}) \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t_{2m-1} - t_{2m})]. \quad (10)$$

The expectation value  $\langle A_{mn}(\mathbf{v}, t) \rangle$  may be evaluated with the help of the factorization procedure [Eq. (7)]. According to this procedure contributions arise from correlation between the fields that interact at any two times:  $t_k$  and  $t_l$ . Therefore each term  $\langle A_{mn}(\mathbf{v}, t) \rangle$  expands into the sum of  $2^m(m!)$  contributions. We must find the leading terms of this sum. As a guide to doing so we consider a simple example. We factor the quantity

$$\langle B(t) \rangle = \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_3 \int_{-\infty}^{t_3} dt_4$$

$$\times \langle \text{Re}[\chi(t_1) \chi^*(t_2)] \text{Re}[\chi(t_3) \chi^*(t_4)] \rangle. \quad (11)$$

The various contributions to  $\langle B(t) \rangle$  may be represented by diagrams (Fig. 1). The interaction times are ordered along an axis. Two-time correlations are figured by staples that connect the relevant vertices. In  $A_{mn}(\mathbf{v}, t)$  and in  $B(t)$  integration is performed over vertex positions along the time axis. In Fig. 1(a) the vertex at time  $t_1$  is permitted to move over a time interval  $\tau_L$ . Correlation between the vertices at  $t_1$  and  $t_2$  confines the motion of the vertex at  $t_2$  to a domain of width  $\tau_c$  around  $t_1$ . The same description applies to vertices at time  $t_3$  and  $t_4$ . Thus, after integration over  $t_1, t_2, t_3$ , and  $t_4$ , the contribution of Fig. 1(a) to  $\langle B(t) \rangle$  is of the order of  $(\chi^0)^4 \tau_c^2 \tau_L^2$ . In Figs. 1(b) and 1(c) staples overlap so that the motion of vertices at  $t_2, t_3, t_4$  is confined in a domain of width  $\tau_c$  around  $t_1$ . Thus the contribution of Figs. 1(b) and 1(c) to  $\langle B(t) \rangle$  is of the order of  $(\chi^0)^4 \tau_c^3 \tau_L$ . It may be neglected with regard to the contribution of Fig. 1(a).

Extending that analysis to  $\langle A_{mn}(\mathbf{v}, t) \rangle$ , we retain only the dominant contribution. Provided that  $\chi^0 \tau_c \ll 1$ ,<sup>20</sup> it corresponds to diagrams with no overlap between the correlation staples that connect the vertices of interaction with  $\chi_1(t)$ . Correlation of  $\chi_2(t)$  with  $\chi_1(t)$  needs to be considered separately. We assume that  $\chi_2(t)$  is an attenuated, delayed replica of its twin field  $\chi_1(t)$ . Then

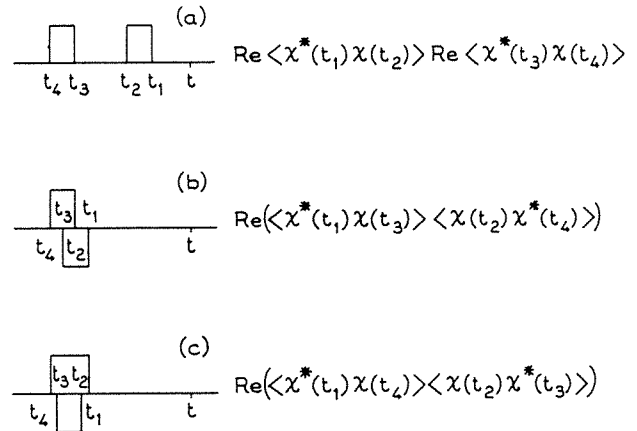


Fig. 1. Representation of the various correlation schemes involved in the expansion of the integrand in Eq. (11).

$$\chi_2(t) = \beta \chi_1(t - t_{12}). \quad (12)$$

Correlation of  $\chi_2(t_k)$  with  $\chi_1(t_l)$  forces the interval  $t_k - t_l$  to equal  $t_{12}$ . Thus each diagram includes a staple that connects the two  $t_{12}$ -distant vertices where the system is coupled with the two correlated laser pulses (Fig. 2). This staple is liable to overlies staples between  $\tau_c$ -distant vertices. When  $t_{12} > 0$ , dominant diagrams contain a  $t_{12}$ -long staple that connects a  $\chi_2$ -coupling at time  $t_{2n-1}$  with a  $\chi_1$ -coupling at time  $t_{2p}$  [Fig. 2(a)]. Conversely, when  $t_{12} < 0$ , dominant diagrams contain a  $t_{12}$ -long staple that connects a  $\chi_2$ -coupling at time  $t_{2n}$  with a  $\chi_1$ -coupling at time  $t_{2p-1}$  [Fig. 2(b)]. We restrict our discussion to the situation where  $t_{12} > 0$ . Then  $\langle A_{mn} \rangle$  may be expanded in a series of components  $\langle A_{mn}^p \rangle$ , where  $p$  refers to correlation between field  $\chi_1(t)$  at time  $t_{2p}$  and field  $\chi_2(t)$  at time  $t_{2n-1}$ :

$$\langle A_{mn}(\mathbf{v}, t) \rangle = \sum_{p=n}^m \langle A_{mn}^p(\mathbf{v}, t) \rangle, \quad (13)$$

where the leading term in  $\langle A_{mn}^p(\mathbf{v}, t) \rangle$  is

$$\langle A_{mn}^p(\mathbf{v}, t) \rangle = \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{2n-2}} dt_{2n-1} \int_{-\infty}^{t_{2n-1}} dt_{2n}$$

$$\times \int_{-\infty}^{t_{2n}} dt_{2n+1} \dots \int_{-\infty}^{t_{2p-1}} dt_{2p} \dots \int_{-\infty}^{t_{2m-2}} dt_{2m-1} \int_{-\infty}^{t_{2m-1}} dt_{2m}$$

$$\times \text{Re}[\langle \chi_1(t_1) \chi_1^*(t_2) \rangle \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t_1 - t_2)]$$

$$\times \dots \times 1/2 \langle \chi_2(t_{2n-1}) \chi_1^*(t_{2p}) \rangle \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t_{2n-1} - t_{2p})$$

$$\times 1/2 \langle \chi_1^*(t_{2n}) \chi_1(t_{2n+1}) \rangle \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t_{2n+1} - t_{2n})$$

$$\times \dots \times 1/2 \langle \chi_1^*(t_{2p-2}) \chi_1(t_{2p-1}) \rangle \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})$$

$$\times (t_{2p-1} - t_{2p-2}) \dots \times \text{Re}[\langle \chi_1(t_{2p+1}) \chi_1^*(t_{2p+2}) \rangle$$

$$\times \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t_{2p+1} - t_{2p+2})] \dots \times \text{Re}[\langle \chi_1(t_{2m-1})$$

$$\times \chi_1^*(t_{2m}) \rangle \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t_{2m-1} - t_{2m})]. \quad (14)$$

Integration is then performed over the variables  $t_q$ , where  $q$  scans odd numbers from 1 to  $2n - 1$  and from  $2p + 1$  to  $2m - 1$  and even numbers from  $2n$  to  $2p - 2$ . One obtains

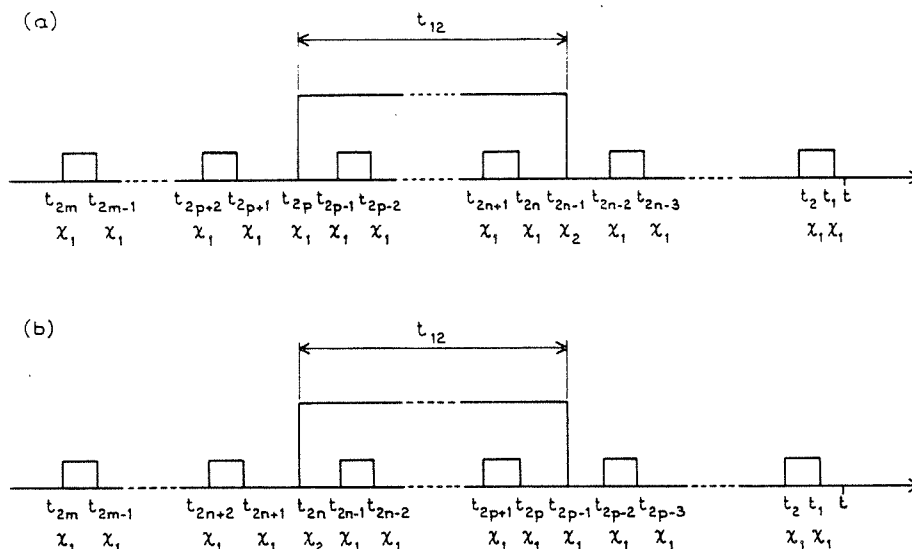


Fig. 2. Representation of the correlation schemes that are dominant in the interaction of an atomic sample with two time-delayed, correlated fields. Expansion is restricted to the first order in the field  $\chi_2$ , which is assumed to be weak.

$$\begin{aligned}
 \langle A_{mn}^P(\mathbf{v}, t) \rangle &= \beta \int_{-\infty}^t dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{2n-1}} dt_{2n-2} \int_{-\infty}^{t_{2n-2}-t_{12}} \\
 &\times dt_{2p} \int_{t_{2p}}^{t_{2p}+t_{12}} dt_{2n+1} \int_{t_{2p}}^{t_{2n+1}} dt_{2n+3} \dots \\
 &\times \int_{t_{2p}}^{t_{2p-1}} dt_{2p-1} \int_{-\infty}^{t_{2p}} dt_{2p+2} \int_{-\infty}^{t_{2m-2}} dt_{2m} \\
 &\times [\text{Re}[G(\Delta)]]^n [\chi^0(t_2) \dots \chi^0(t_{2n-2})]^2 \\
 &\times [G^*(\Delta)/2]^{p-n} [\chi^0(t_{2p}) \chi^0(t_{2n+1}) \\
 &\times \dots \chi^0(t_{2p-1})]^2 \\
 &\times [\text{Re}[G(\Delta)]]^{m-p} [\chi^0(t_{2p+2}) \dots \chi^0(t_{2m})]^2 \\
 &\times \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})t_{12}, \tag{15}
 \end{aligned}$$

where

$$G(\Delta) = \int_0^\infty d\tau g(\tau) \exp -i\Delta\tau.$$

The function  $g(\tau)$  was defined in Eqs. (5), and the condition  $\gamma_{ab}\tau_c \ll 1$  has been used to simplify the expression of  $G(\Delta)$ . This expression is rearranged into

$$\begin{aligned}
 \langle A_{mn}^P(\mathbf{v}, t) \rangle &= \beta \text{Re}[G(\Delta)] \int_{-\infty}^{t-t_{12}} dt' [\chi^0(t')]^2 \\
 &\times \left\{ \text{Re}[G(\Delta)] \int_{t'+t_{12}}^t dt'' [\chi^0(t'')]^2 \right\}^{n-1} / (n-1)! \\
 &\times \left\{ G^*(\Delta) \int_{t'}^{t'+t_{12}} dt'' [\chi^0(t'')]^2 / 2 \right\}^{p-n} / (p-n)! \\
 &\times \left\{ \text{Re}[G(\Delta)] \int_{-\infty}^{t'} dt'' [\chi^0(t'')]^2 \right\}^{m-p} / (m-p)! \\
 &\times \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})t_{12}. \tag{16}
 \end{aligned}$$

Equation (16) is substituted into Eq. (13) and then into Eq. (9). Summation over  $m, n$ , and  $p$  is completed:

$$\begin{aligned}
 &\sum_{m=1}^\infty \sum_{n=1}^m \sum_{p=n}^m (-)^m \langle A_{mn}^P(\mathbf{v}, t) \rangle \\
 &= -\beta \int_{-\infty}^{t-t_{12}} dt' \text{Re}[G(\Delta)] [\chi^0(t')]^2 \\
 &\times \exp -\left\{ \text{Re}[G(\Delta)] \int_{-\infty}^{t'} dt'' [\chi^0(t'')]^2 \right\} \\
 &\times \exp -\left\{ G^*(\Delta) \int_{t'}^{t'+t_{12}} dt'' [\chi^0(t'')]^2 / 2 \right\} \\
 &\times \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})t_{12} \\
 &\times \exp -\left\{ \text{Re}[G(\Delta)] \int_{t'+t_{12}}^t dt'' [\chi^0(t'')]^2 \right\}. \tag{17}
 \end{aligned}$$

This quantity, which corresponds to the sum of the diagrams illustrated in Fig. 2, may also be represented by a diagram. Indeed, Eq. (17) expresses that the system evolution is governed as follows:

- (i) from  $-\infty$  to  $t_2$  by the decay factor  $U_p(-\infty, t_2; \Delta)$ , where
 
$$U_p(t, t'; \Delta) = \exp -\left\{ \text{Re}[G(\Delta)] \int_{t'}^t dt'' [\chi^0(t'')]^2 \right\}; \tag{18}$$
- (ii) from  $t_2$  to  $t_1$  by the propagation factor  $U_c(t_2, t_1; \Delta)$ , where
 
$$U_c(t, t'; \Delta) = \exp -\left\{ G^*(\Delta) \int_{t'}^t dt'' [\chi^0(t'')]^2 / 2 \right\} \\ \times \exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t' - t); \tag{19}$$
- (iii) from  $t_1$  to  $t$  by the decay factor  $U_p(t_1, t; \Delta)$ .

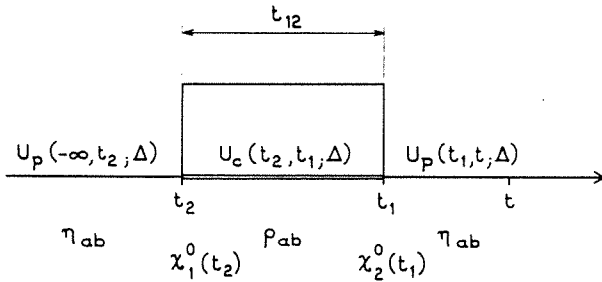


Fig. 3. Diagrammatic representation of an atomic sample interaction with two time-delayed correlated fields under the assumption that one field is weak.

Thus in a diagram representation (Fig. 3) a line from  $-\infty$  to  $t_2$  stands for  $U_p(-\infty, t_2; \Delta)$ . The line goes on between two vertices located at  $t_2$  and  $t_1$  and represents  $U_c(t_2, t_1, \Delta)$ . Then the line continues from  $t_1$  to  $t$ , representing  $U_p(t_1, t, \Delta)$ . The vertices stand for interactions with fields. The staple indicates that the time interval between vertices is set equal to  $t_{12}$ .

The decay factor that describes evolution from  $-\infty$  to  $t_2$  and from  $t_1$  to  $t$  is a specific feature of the saturation decay of a level-population difference. The same factor accounts for the saturation decay of the mean population difference when the sample is irradiated by a single broadband field. The time evolution of the ensemble-averaged population difference then reads as

$$\langle n_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \rangle = U_p(t', t; \Delta) \langle n_{ab}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t') \rangle. \quad (20)$$

Although intervals  $[-\infty, t_2, t_1, t]$  are dominated by the level-population behavior, the propagation factor on interval  $[t_2, t_1]$  reflects an atomic coherence evolution. The final expression for  $\langle \hat{n}_{ab}(1; \mathbf{v}, t) \rangle$  is

$$\begin{aligned} \langle \hat{n}_{ab}(1; \mathbf{v}, t) \rangle = & -\beta \exp \left\{ -\text{Re}[G(\Delta)] \int_{-\infty}^t dt' [\chi^0(t')]^2 \right\} \\ & \times \int_{-\infty}^{t-t_{12}} dt' \text{Re}[G(\Delta)] [\chi^0(t')]^2 \\ & \times \exp \left\{ G(\Delta) \int_{t'}^{t'+t_{12}} dt'' [\chi^0(t'')]^2 / 2 \right\} \\ & \times \exp \left\{ -(i\Delta + \gamma_{ab}) t_{12} n_{ab}^{(0)}(\mathbf{v}) \right\}. \quad (21) \end{aligned}$$

#### 4. DISCUSSION

In the weak-field limit when two time-delayed correlated pulses are involved in the formation of a population grating, this spatial structure is built up from the memory of excitation, which is retained by atomic coherence during the time delay  $t_{12}$  between pulses.<sup>14</sup> Unexpectedly, our calculation indicates that saturation does not obliterate the excitation memory during that interval. The grating grooves even seem to deepen as a function of  $t_{12}$ . Indeed, the  $t_{12}$  dependence in Eq. (21) is located in the term

$$\exp \left\{ G(\Delta) \int_{t'}^{t'+t_{12}} dt'' [\chi^0(t'')]^2 \right\} \exp \left\{ -(i\Delta + \gamma_{ab}) t_{12} \right\},$$

where the field-dependent factor is an increasing function of  $t_{12}$ . The diagram in Fig. 3 helps us to understand this surprising behavior. It indicates that under the field-strength conditions that we consider, the grating buildup still includes a step where excitation is retained by atomic coherence. According to Eqs. (18) and (19), power relaxation affects atomic coherence less strongly than the level-population difference. Thus the population grating at the end of the pulse sequence will be larger if the system evolves a longer time as an atomic coherence.

To be more specific, we assume that the field envelope  $\chi^0(t)$  does not vary significantly over interval  $t_{12}$  and that the correlation function takes on the form

$$g(\tau) = \exp(-|\tau|/\tau_c). \quad (22)$$

Then the level-population difference reads as

$$\begin{aligned} \langle \hat{n}_{ab}(1; \mathbf{v}, t) \rangle = & \beta \exp \left\{ - \int_{-\infty}^t dt' [\chi^0(t')]^2 \tau_c \mathcal{L}(\Delta) \right\} \\ & \times \int_{-\infty}^{t-t_{12}} dt' [\chi^0(t')]^2 \tau_c \mathcal{L}(\Delta) \\ & \times \exp \left\{ -[\gamma_{ab} - [\chi^0(t')]^2 \tau_c \mathcal{L}(\Delta)/2] t_{12} \right\} \\ & \times \exp \left\{ -i\Delta t_{12} [1 + [\chi^0(t')]^2 \tau_c^2 \mathcal{L}(\Delta)/2] \right\} \\ & \times n_{ab}^{(0)}(\mathbf{v}), \quad (23) \end{aligned}$$

where

$$\mathcal{L}(\Delta) = (1 + \Delta^2 \tau_c^2)^{-1}.$$

At  $\Delta = 0$  the growth rate of the population grating as a function of  $t_{12}$  is  $\frac{1}{2} [\chi^0(t')]^2 \tau_c$ . In the weak-field limit a broadband light pulse uniformly excites all velocity classes, provided that the line Doppler width  $\Omega_D$  is much smaller than the inverse coherence time  $\tau_c^{-1}$ . The velocity dependence of excitation by a strong field is illustrated by considering Eq. (23). According to this equation, uniform excitation over the Doppler width is subject to the more stringent requirement that

$$\Omega_D^2 \tau_c^3 \tau_L [\chi^0(t)]^2 \ll 1. \quad (24)$$

The  $t_{12}$ -dependent factor is unaffected by the velocity sensitivity of excitation, provided that

$$\Omega_D^2 \tau_c^3 t_{12} [\chi^0(t)]^2 \ll 1. \quad (25)$$

A higher-order condition guarantees that the modulation engraved in velocity space by the two-pulse sequence<sup>16,17</sup> is not distorted by velocity dependence of excitation. That condition reads as

$$\Omega_D^3 \tau_c^4 t_{12} [\chi^0(t)]^2 \ll 1. \quad (26)$$

By using the assumption of condition (25), the  $t_{12}$ -varying factor in Eq. (23) reduces to

$$\exp \left\{ -[\gamma_{ab} - [\chi^0(t')]^2 \tau_c / 2 + i\Delta] t_{12} \right\}.$$

Then the grating decay as a function of  $t_{12}$  is dominated by the coherence decay rate  $\gamma_{ab}$  as long as

$$2\gamma_{ab} \gg [\chi^0(t')]^2 \tau_c. \tag{27}$$

To our knowledge, this is the first time that saturation effects are fully accounted for in order to describe a process in which overlapping time-delayed, correlated pulses are involved. To achieve this calculation we have developed a diagram representation. We examine the extension of this representation in Section 5.

### 5. EXTENSION OF THE DIAGRAM REPRESENTATION

We have calculated the expectation value of the population grating, which is built up by the interaction of a two-level-system vapor with two time-delayed correlated pulses, in the limit when at least one field is weak. This calculation led us to introduce a diagram representation. In these diagrams most of the coupling with the field is described by a simple propagation factor. Extension of this diagram representation is expected to simplify the calculation of other statistical moments. It is also expected to permit withdrawal of the restrictive conditions on the field strength. Such an extension is needed if one is to determine the saturation effects in typical coherent-transient signals, such as photon echoes (see Section 2).

As an example, we examine the diagram representation of the second-order statistical moment of the level population difference  $\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t)n_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle$  when excited by a single, broadband laser pulse. The population differences  $n_{ab}(\mathbf{v}, t)$  and  $n_{ab}(\mathbf{v}', t)$  are expressed as a series of time-ordered terms:

$$n_{ab}(\mathbf{v}, t) = \sum_m C_m(\mathbf{v}, t)n_{ab}^{(0)}(\mathbf{v}), \tag{28}$$

where

$$C_m(\mathbf{v}, t) = \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{2m-2}} dt_{2m-1} \int_{-\infty}^{t_{2m-1}} dt_{2m} \\ \times \text{Re}[\chi(t_1)\chi^*(t_2)\exp -(i\Delta + \gamma_{ab})(t_1 - t_2)] \\ \times \dots \times \text{Re}[\chi(t_{2m-1})\chi^*(t_{2m})\exp -(i\Delta + \gamma_{ab}) \\ \times (t_{2m-1} - t_{2m})]. \tag{29}$$

This expansion exhibits the time ordering of interactions with the fields. However, in  $\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t)n_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle$  interactions that contribute to  $n_{ab}(\mathbf{v}, t)$  are not time ordered with those that contribute to  $n_{ab}(\mathbf{v}', t)$ . In the relevant diagram interactions should develop along two independent time axes. Then each field  $\chi(t_i)$  that is branched on a given axis at time  $t_i$  may be correlated either with another vertex on the same axis or with a vertex on the other time axis. Correlations on the same axis are accounted for by the previously defined propagation factors. A correlation between both axes connects a field at time  $t_i$  with a field at time  $s_i$ , such that  $|t_i - s_i| < \tau_c$ . On the dominant diagrams the connection lines do not cross each other. The generic resulting diagram is represented in Fig. 4(a). In a way similar to single-line diagrams,

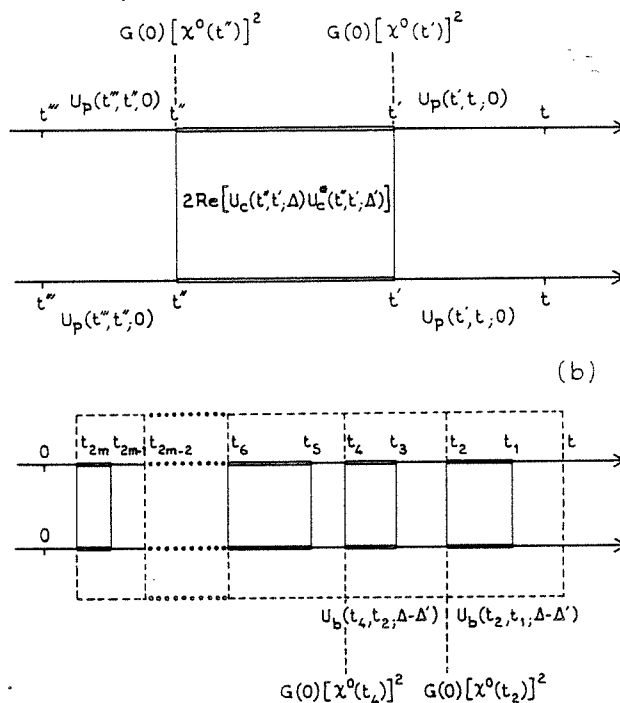


Fig. 4. Two-line diagrams that are involved in the calculation of the second-order statistical moments of atomic quantities when excitation is provided by a single broadband field.

the atomic system evolves alternately as a population difference and as an atomic coherence. Along an interval  $[t, t']$ , where the population character dominates, the propagation factor equals the squared single-line propagator  $[(U_p(t, t'; 0))]^2$  (provided that  $\Omega_D \tau_c \ll 1$ ). Along an interval  $[t', t'']$ , where the coherence character dominates, the propagation factor equals  $2 \text{Re}[U_c(t', t'; \Delta)U_c^*(t'', t'', \Delta')]$ . Each vertex contributes a factor  $[G(0)]^{1/2}\chi^0(t)$ . A two-line diagram appears to be a concatenation of elementary boxes [Fig. 4(b)]. A propagation factor  $U_b(t_{2i+2}, t_{2i}, \Delta - \Delta')$  is associated with each elementary box that extends from  $t_{2i+2}$  to  $t_{2i}$ . The calculation of this propagation factor and the summation of diagrams are deferred to Appendix A. This procedure is easily generalized to the determination of either  $\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t)n_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle$  or  $\langle \rho_{ab}(\mathbf{v}, t)\rho_{ba}(\mathbf{v}', t) \rangle$  while starting with any of  $\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t_0)n_{ab}(\mathbf{v}', t_0) \rangle$  and  $\langle \rho_{ab}(\mathbf{v}, t_0)\rho_{ba}(\mathbf{v}', t_0) \rangle$  at the beginning of the laser pulse. Results of this calculation are also presented in Appendix A.

### 6. CONCLUSION

We have presented a promising method for describing the power effects that occur during resonant excitation of a vapor by time-delayed, correlated, broadband laser pulses. The diagram representation that has been developed will soon be extended to the calculation of actual coherent-transient signals. Essentially the same representation is described in the paper of Friedberg and Hartmann.<sup>15</sup> However, our calculations of the first statistical moment of atomic quantities, performed under the assumption that one field is weak, is to our knowledge the first exact result obtained for overlapping pulses of this kind.



## APPENDIX A: TWO-LINE PROPAGATION FACTORS

The propagation factor that corresponds to an elementary box from  $t''$  to  $t$  is given by

$$U_b(t'', t; \Omega) = \int_{t''}^t dt' G(0) [\chi^0(t')]^2 [U_p(t', t; 0)]^2 \times 2 \operatorname{Re}[U_c(t'', t'; \Delta) U_c^*(t'', t'; \Delta')], \quad (\text{A1})$$

where  $\Omega = \Delta - \Delta'$ .

In what follows we assume that the pulse envelope is a rectangle function:

$$\chi^0(t) = \begin{cases} 0 & t < 0 \text{ or } t > T \\ \chi^0 & 0 \leq t \leq T \end{cases}. \quad (\text{A2})$$

Then the propagation factor takes on the form

$$U_b(t'', t; \Omega) = \Theta(t'') U(t - t''; \Omega), \quad (\text{A3})$$

where

$$U(\tau; \Omega) = 2\alpha \operatorname{Re}[\exp - (\alpha + 2\gamma_{ab} + i\Omega)\tau - \exp - 2\alpha\tau / (\alpha - 2\gamma_{ab} - i\Omega)], \quad (\text{A4})$$

where  $\Theta(t)$  is the Heaviside step function and  $\alpha = (\chi^0)^2 G(0)$ . The expansion of  $\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t) n_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle$  over the diagrams reads as

$$\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t) n_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle = \sum_{m=0} D_{2m}(\mathbf{v}, \mathbf{v}'; t) [n_{ab}^{(0)}(\mathbf{v})]^2, \quad (\text{A5})$$

where  $D_{2m}$  is the contribution of the  $m$ -box diagram. At time 0 the system starts with the character of a population difference and propagates until time  $t_{2m}$  with decay rate  $[U_p(0, t_{2m}; 0)]^2$ . Then, from time  $t_{2m}$  to time  $t$ ,  $m$  boxes are linked together. The first box of the diagram starts at time  $t_{2m}$ , and it ends at time  $t_{2m-2}$ . Each frontier between two boxes contributes the factor  $\alpha$ . Thus the contribution of the  $m$ -box diagram is

$$D_{2m}(\mathbf{v}, \mathbf{v}'; t) = \alpha^m \int_{-\infty}^t dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_4 \dots \int_{-\infty}^{t_{2m-2}} dt_{2m} \times [U_p(0, t_{2m}; 0)]^2 U_b(t_{2m}, t_{2m-2}; \Omega) \times \dots \times U_b(t_2, t; \Omega) \quad (\text{A6})$$

Setting  $\tau_n = t_{2n-2} - t_{2n}$  and noting that  $U_p(0, t_{2m}, 0) = \exp - 2\alpha t_{2m}$ , we obtain

$$D_{2m}(\mathbf{v}, \mathbf{v}'; t) = \alpha^m \int_0^\infty d\tau_1 \int_0^\infty d\tau_2 \dots \int_0^\infty d\tau_m \times \exp - 2\alpha(t - \tau_1 - \tau_2 \dots - \tau_m) \times U(\tau_m; \Omega) \dots U(\tau_1; \Omega) \times \Theta(t - \tau_1) \Theta(t - \tau_1 - \tau_2) \dots \times \Theta(t - \tau_1 - \tau_2 \dots - \tau_m). \quad (\text{A7})$$

We notice that

$$\Theta(t - \tau_1) \Theta(t - \tau_1 - \tau_2) \dots \Theta(t - \tau_1 - \tau_2 \dots - \tau_m) \equiv \Theta(t - \tau_1 - \tau_2 \dots - \tau_m). \quad (\text{A8})$$

In addition, we observe that

$$\Theta(t - \tau_1 - \tau_2 \dots - \tau_m) \exp[-2\alpha(t - \tau_1 - \tau_2 \dots - \tau_m)] = \int_0^\infty d\tau_{m+1} \delta(t - \tau_1 - \dots - \tau_m - \tau_{m+1}) \exp(-2\alpha\tau_{m+1}). \quad (\text{A9})$$

Substitution into Eq. (A7) lead to

$$D_{2m}(\mathbf{v}, \mathbf{v}', t) = (2\pi)^{-1} \int dQ \{[\alpha \hat{U}(Q; \Omega)]^m \exp(iQt)\} / (iQ + 2\alpha), \quad (\text{A10})$$

where

$$\hat{U}(Q; \Omega) = \int_0^\infty d\tau U(\tau; \Omega) \exp(-iQ\tau). \quad (\text{A11})$$

Substitution of Eq. (A10) into Eq. (A5) results in the final expression of  $\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t) n_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle$ :

$$\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t) n_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle = \langle n_{ab}(\mathbf{v}, 0) n_{ab}(\mathbf{v}', 0) \rangle (2\pi)^{-1} \times \int dQ \exp(iQt) / (iQ + 2\alpha) \times [1 - \alpha \hat{U}(Q; \Omega)]. \quad (\text{A12})$$

The contour-integral method may be used to complete the calculation. When  $\Omega \neq 0$ , a general expression is not obtained under an explicit form because the singularities inside the contour are located at the zeros of a cubic function. When  $\Omega = 0$ , calculation is easily completed, and it leads to

$$\langle [n_{ab}(\mathbf{v}, t)]^2 \rangle = \langle [n_{ab}(\mathbf{v}, 0)]^2 \rangle \{ \alpha + 2\gamma_{ab} + 2\alpha \exp[-(3\alpha + 2\gamma_{ab})t] / (3\alpha + 2\gamma_{ab}) \}. \quad (\text{A13})$$

Other quantities may be calculated, depending on the type of line the diagram starts or ends on. Starting with the character of a population difference and ending with the character of an atomic coherence, we obtain

$$\langle \rho_{ab}(\mathbf{v}, t) \rho_{ba}(\mathbf{v}', t) \rangle = \langle n_{ab}(\mathbf{v}, 0) n_{ab}(\mathbf{v}', 0) \rangle \alpha (2\pi)^{-1} \times \int dQ \exp iQt / (iQ + 2\alpha) [\alpha + 2\gamma_{ab} + i(-\Omega + Q)] [1 - \alpha \hat{U}(Q; \Omega)]. \quad (\text{A14})$$

Starting with the character of an atomic coherence and ending with the character of a population difference, we obtain

$$\langle n_{ab}(\mathbf{v}, t) n_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle = \langle \rho_{ab}(\mathbf{v}, 0) \rho_{ba}(\mathbf{v}', 0) \rangle \alpha (2\pi)^{-1} \times \int dQ \exp(iQt) / (iQ + 2\alpha) [\alpha + 2\gamma_{ab} + i(Q - \Omega)] [1 - \alpha \hat{U}(Q; \Omega)]. \quad (\text{A15})$$

And at last, starting and ending with the character of an atomic coherence, we obtain

$$\langle \rho_{ab}(\mathbf{v}, t) \rho_{ba}(\mathbf{v}', t) \rangle = \langle \rho_{ab}(\mathbf{v}, 0) \rho_{ba}(\mathbf{v}', 0) \rangle \alpha^2 (2\pi)^{-1} \times \int dQ \exp(iQt) \{ [\alpha + 2\gamma_{ab} + i(Q - \Omega)]^2 (2\alpha + iQ) \times [1 - \alpha \hat{U}(Q; \Omega)]^{-1} + \alpha^{-2} \times [\alpha + 2\gamma_{ab} + i(Q - \Omega)]^{-1} \}. \quad (\text{A16})$$

$$\begin{aligned} \langle \rho_{ba}(\mathbf{v}, t) \rho_{ab}(\mathbf{v}', t) \rangle &= \langle \rho_{ab}(\mathbf{v}, 0) \rho_{ba}(\mathbf{v}', 0) \rangle \alpha^2 (2\pi)^{-1} \\ &\times \int dQ \exp(iQt) \{[(\alpha + 2\gamma_{ab} + iQ)^2 + \Omega^2] \\ &\times (2\alpha + iQ)[1 - \alpha \tilde{U}(Q; \Omega)]\}^{-1}. \quad (\text{A17}) \end{aligned}$$

## REFERENCES

1. S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, and M. Matsuoka, "Accumulated photon echoes with incoherent light in Nd<sup>3+</sup> doped silicate glass," *Phys. Rev. A* **29**, 2286-2289 (1984).
2. H. Nakatsuka, M. Tomita, M. Fujiwara, and S. Asaka, "Subpicosecond photon echoes by using nanosecond laser pulses," *Opt. Commun.* **52**, 150-152 (1984).
3. N. Morita and T. Yajima, "Ultra-high-resolution coherent transient spectroscopy with incoherent light," *Phys. Rev. A* **30**, 2525-2536 (1984).
4. M. Fujiwara, R. Kuroda, and H. Nakatsuka, "Measurement of ultrafast dephasing time of cresyl fast violet in cellulose by photon echoes with incoherent light," *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1634-1639 (1985).
5. J. E. Golub and T. W. Mossberg, "Studies of picosecond collisional dephasing in atomic sodium vapor using broad-bandwidth transient four-wave mixing," *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 554-559 (1986).
6. M. Tomita and M. Matsuoka, "Ultrafast pump-probe measurement using intensity correlation of incoherent light," *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 560-563 (1986).
7. M. Defour, J.-C. Keller, and J.-L. Le Gouët, "Broadband excitation and inhomogeneous broadening in photon-echo experiments," *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 544-547 (1986).
8. J. E. Golub and T. W. Mossberg, "Ultra-high frequency interference beats in transient, incoherent-light four-wave mixing," *Opt. Lett.* **11**, 431-433 (1986).
9. R. Beach, D. De Beer, and S. R. Hartmann, "Time-delayed four-wave mixing using intense incoherent light," *Phys. Rev. A* **32**, 3467-3474 (1985).
10. I. D. Abella, N. A. Kurnit, and S. R. Hartmann, "Photon echoes," *Phys. Rev.* **141**, 391-406 (1966).
11. P. F. Liao, N. P. Economou, and R. R. Freeman, "Two-photon coherent transient measurements of Doppler-free linewidths with broad excitation," *Phys. Rev. Lett.* **39**, 1473-1476 (1977).
12. R. G. Brewer and R. L. Shoemaker, "Optical free induction decay," *Phys. Rev. A* **6**, 2001-2007 (1972); R. G. de Voe, A. Szabo, S. C. Rand, and R. G. Brewer, "Ultraslow optical dephasing of LaF<sub>3</sub>:Pr<sup>3+</sup>," *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1560-1563 (1979).
13. A. Laubereau and W. Kaiser, "Vibrational dynamics of liquids and solids investigated by picosecond light pulses," *Rev. Mod. Phys.* **50**, 607-665 (1978); S. M. George, A. L. Harris, M. Berg, and C. B. Harris, "Picosecond studies of the temperature dependence of homogeneous and inhomogeneous vibrational line width broadening in liquid acetonitrile," *J. Chem. Phys.* **80**, 83-94 (1984).
14. M. Defour, J.-C. Keller, and J.-L. Le Gouët, "Power effects in broadband optical transients," *Phys. Rev. A* **36**, 5226-5234 (1987).
15. R. Friedberg and S. R. Hartmann, "A diagrammatic technique for calculating radiation of coherently or incoherently excited two-level atoms," *J. Phys. B* **21**, 683-712 (1988).
16. T. W. Mossberg, R. Kachru, S. R. Hartmann, and A. M. Flusberg, "Echoes in gaseous media: a generalized theory of rephasing phenomena," *Phys. Rev. A* **20**, 1976-1996 (1979).
17. T. W. Mossberg, A. Flusberg, R. Kachru, and S. R. Hartmann, "Total scattering cross section for Na on He measured by stimulated photon echoes," *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1665-1669 (1979); R. Kachru, T. W. Mossberg, and S. R. Hartmann, "Stimulated photon echo study of Na(3<sup>2</sup>S<sub>1/2</sub>)-CO velocity changing collisions," *Opt. Commun.* **30**, 57-62 (1979).
18. H. Nakatsuka, J. Okada, and M. Matsuoka, "Observation of coherence in two-photon excited Rb-vapor," *J. Phys. Soc. Jpn.* **37**, 1406-1412 (1974).
19. P. Agostini, A. T. Georges, S. E. Wheatley, P. Lambropoulos, and M. D. Levenson, "Saturation effects in resonant three-photon ionisation of sodium with a non-monochromatic field," *J. Phys. B* **11**, 1733-1747 (1978).
20. N. G. Van Kampen, *Stochastic Processes in Physics and Chemistry* (North-Holland, Amsterdam, 1981), pp. 381-412.

## Article 2



# Physical Review A (sous presse)

OPTICAL COHERENT TRANSIENT INDUCED BY TIME-DELAYED  
CORRELATED BROAD-BANDWIDTH PULSES IN THE STRONG FIELD  
REGIME.

P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët,

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, bât. 505, 91405 Orsay Cédex. FRANCE

Abstract : A diagrammatic technique is developed to account for the saturation effects which occur when Optical Coherent Transients are generated by broad-bandwidth light pulses. The paper is focused on the calculation of the two-atom, single time dipole correlation function which originates the signal. In addition to the single-excitation-field situation, we examine the coherent transient generation by overlapping time-delayed correlated pulses. Our approach requires that one of the two correlated pulses be weak. The calculation of the delay-dependence of the signal intensity is thoroughly worked out in the case of two-pulse and three-pulse transients in an angled-beam configuration.

## I - INTRODUCTION

Optical coherent transients include all processes where a light pulse coherently excites an ensemble of oscillating atomic dipoles which then emit an optical signal. Photons Echoes [1], Optical Nutation [2], Optical Free Decay [3], Four Wave Mixing [4], Coherent Raman Scattering [5] are all covered by this definition. Some of these processes may be regarded as "pump-probe" mechanisms where a light pulse stores the excitation memory in atomic dipoles, which are then explored by a second pulse. It has been recognized recently [6,7] that the time interval between "pump" and "probe" interactions may be determined at the accuracy of the light source autocorrelation time  $\tau_c$ . This ultimate time resolution is achieved when the "pump" and "probe" fields are correlated. When Fourier transform limited pulses are used, the autocorrelation time identifies with the pulse duration  $\tau_L$ . But when excitation is achieved by broadband pulses, the time resolution  $\tau_c$ , which coincides with the inverse spectral width of the pulse, may be much smaller than  $\tau_L$ . Then the atomic dipole evolution may be monitored on a time scale much smaller than the laser pulse duration. One has taken advantage of this property to measure  $T_2$ -type lifetimes much shorter than  $\tau_L$  [8-11] and to perform coherent excitation over spectral domains much wider than  $\tau_L^{-1}$  [12-13]. Until those broadband experiments were performed, most of works in the area of time resolved coherent spectroscopy focused on investigation of atomic system evolution in the course of radiation-free time intervals. Reduction of the time interval between "pump" and "probe" interactions beneath the pulse duration  $\tau_L$  results in pulse overlapping. There is no longer any radiation free interval between the "pump" and "probe" pulses. Then interaction with light interferes with the decay process under investigation. In the weak field limit both effects have been properly disentangled [7]. So, all previously mentioned broadband experiments have been performed under weak field conditions. However larger signal intensity would be attainable with stronger excitation pulses. It is therefore important to elucidate the strong field problem.

The definition of the autocorrelation time  $\tau_c$  implies a statistical average. Therefore, under broadband excitation conditions, only ensemble averaged physical quantities do make sense. Whatever signal is observed, its expectation value may be expressed in terms of statistical moments of atomic quantities.

During the ten past years much effort has been devoted to determine time dependent excitation probabilities and laser-induced resonance fluorescence spectra in the presence of a broadband field. Excitation probability of a two-level atom is expressed in terms of the statistical average of level populations. The fluorescence spectrum depends on the two-time correlation functions of a single-atom dipole. In most theoretical approaches, the quantum mechanical atomic equation of motion is substituted with an equation which describes the time evolution of some statistical average of atomic quantities. Two classes of problems have been investigated. In the first category are situations where the stochastic field can be regarded as a *short correlation-time* process. So are named processes with  $\tau_c$  much smaller than  $T = (\chi^2 \tau_c)^{-1}$ , where  $\chi$  is the quadratic average of the Rabi frequency. Then, without further specification of the statistical properties of the field, all the atomic statistical moments can be expressed in terms of the two-time correlation function of the laser field. General aspects of this approach are reviewed in the works of Brissaud and Frisch [14] and of Van Kampen [15]. It proved useful to analyse such data as these obtained in experiments on photo-induced fluorescence [16] or on multiphoton ionization [17]. With increasing field strength, the *short correlation-time* condition is ultimately violated. Then there exists no general method to study the time evolution of the atomic statistical moments. However, provided the field can be regarded as a *Markov process*, solutions can be obtained in the *long correlation-time* région [15]. The second category of recently investigated problems deals with excitation by fields which belong to a special class of Markov processes, namely the *Markov jump processes*. Then one gets rid of the limitation of the field strength at

the expense of modeling the time evolution of the laser field. The field parameters are assumed to undergo instantaneous random jumps at randomly distributed times. This approach has been recently reviewed [18]. It has been developed mainly after the works of Burshtein [19] although it can be traced back in the early fifties in papers by Kubo and Anderson [20,21].

Coherent transient signals cannot be expressed in terms of the same statistical moments as excitation probabilities or laser-induced resonance fluorescence. Coherent transient signals depend on the one-time correlation function of two different atoms [7,22]. This function has been calculated very recently in the frame of the Gaussian random-process model, within the limits of the *short correlation-time* condition. In these calculations, atomic systems are driven by a single field. This description is relevant to processes such as optical free decay [3], optical nutation [2], two-or three-pulse echoes produced by uncorrelated fields. It also applies to the three-pulse echo when two weak time-delayed correlated fields build a population grating, which is then probed by an independent intense broadband pulse. We have investigated this situation experimentally [25]. Then it remains to solve the power effect problem when the atomic system is driven by time-delayed correlated fields.

Experiments have shown the existence of relaxation effects in two-or three-pulse echoes when excitation is provided by time-delayed correlated intense fields [22,26]. These effects have not yet been accounted for correctly. The configuration with time-delayed correlated fields raises an interesting theoretical problem. Due to their mutual correlations, the driving fields must be regarded as the components of a unique composite field. Then this excitation process proves to be *Non Markovian*. The relevant correlation time is not the coherence time  $\tau_c$  but is rather the delay between the correlated fields. As soon as this delay exceeds the characteristic time  $T$ , one is faced with a *long correlation-time*



process which falls out of reach of previously developed theories [18-21] since it is also a *Non Markov process*. In a first attempt to solve this problem we have calculated the statistical average of the population grating induced by two time-delayed pulses with provision that one field is weak [24]. Our approach essentially applies when *each one* of the two correlated fields may be regarded on its own as a *short correlation-time* process. It relies on a diagrammatic picture. In the present paper we reformulate this picture and we accord it with the diagrammatic approach that Bourret proposed a quarter of century ago to describe the coupling of a scalar field with a *short correlation-time* stochastic perturbation with gaussian statistics [27]. This work leans upon concepts from the quantum field theory. The driving of a two-level system by a stochastic field is basically amenable to the same description. A similar approach has been developed independently by Friedberg and Hartmann [23]. Then we are able to extend our previous calculation of the statistically averaged population grating to the calculation of observable quantities, that is to say the second order statistical moments of level-populations and of atomic dipoles.

In section II, we first write down the equation of motion of the two-level systems. A diagrammatic representation is associated with the integral form of the equation of motion. Then we define the stochastic properties of the driving field. Averaged atomic level population and coherences are obtained and are regarded as renormalized quantities. In section III, these renormalized quantities are used to build the two-atom correlation functions in the presence of a single field, within the frame of the *short correlation-time* condition. In section IV a second field is added which is assumed to be weak. The related perturbations to the two-atom correlation functions are calculated. The two fields are allowed to be correlated and the delay between them may exceed the characteristic time  $T$  of the stronger one. In section V the two-atom correlation functions are used to calculate the signal expression in two-pulse and three-pulse optical transient configurations.

## II - DIAGRAMMATIC REPRESENTATION

### II - 1. Equations of motion

The sample is a vapor of two-level atoms which is irradiated by a plane electromagnetic field, close to resonance with the atomic transition. The electric field is along Ox and the wave propagates along Oz. Its space and time variation is defined by :

$$E_x(z, t) = E(t) \cos(\omega t - kz + \phi(t)) \quad (1)$$

where  $E(t)$  and  $\phi(t)$  are slowly varying functions of time with regard to optical oscillations. The atomic system evolution is described in Schrödinger representation by the density matrix equation :

$$i\hbar \dot{\rho} + i\hbar \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho = [H, \rho] + \text{relaxation terms} \quad (2)$$

On the time scale of the problem, the relaxation terms are assumed to be negligible. The translation term on the left hand side of Eq.2 expresses the dependence on velocity  $\vec{v}$ . The density matrix which is considered results from averaging over a certain velocity and space domain. As a consequence, the translational motion is described in the frame of classical mechanics. Then the density matrix elements satisfy the equations :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{aa} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho_{aa} &= i\hat{\chi} (\rho_{ba} - \rho_{ab}) \cos(\omega t - kz + \phi(t)) \\ \dot{\rho}_{bb} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho_{bb} &= i\hat{\chi} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \cos(\omega t - kz + \phi(t)) \\ \dot{\rho}_{ab} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho_{ab} &= i\hat{\chi} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) \cos(\omega t - kz + \phi(t)) + i\omega_{ab} \rho_{ab} \end{aligned} \quad (3)$$

where the two atomic levels are labeled a and b,  $\omega_{ab}$  is the energy separation between the levels,  $\hat{\chi} = \mu_{ab} E(t)/\hbar$  is the Rabi frequency and  $\mu_{ab}$  is the electric dipole moment of the transition. In the rotating wave approximation Eq. 3 reduces to :

$$\dot{n}_{ab} = \frac{-i}{\sqrt{2}} (\chi_{ba}^r - \chi_{ab}^{r*}) \quad (4)$$

$$\dot{r}_{ab} = \frac{i\chi}{\sqrt{2}} n_{ab} + i\Delta r_{ab}$$

$$\begin{aligned}
\text{where } \Delta &= \omega_{ab} - \omega + \vec{k} \cdot \vec{v} \\
r_{ab} &= \sqrt{2} \rho_{ab} \exp(-i\omega t + i\vec{k} \cdot \vec{r}) \\
n_{ab} &= \rho_{bb} - \rho_{aa} \\
\chi &= \frac{\mu_{ab}}{\hbar} E(t) \exp i\phi(t)
\end{aligned} \tag{5}$$

In the following, the driving field is assumed to be tuned on resonance with the atomic transition. Then  $\omega_{ab} = \omega$  and  $\Delta$  reduces to the frequency Doppler shift  $\vec{k} \cdot \vec{v}$ . Formal integration of Eq. 4 leads to :

$$n_{ab}(\Delta, t) = n_{ab}(\Delta, t') + \int_{t'}^t dt'' \frac{-i\chi(t'')}{\sqrt{2}} r_{ba}(\Delta, t'') + \int_{t'}^t dt'' \frac{i\chi^*(t'')}{\sqrt{2}} r_{ab}(\Delta, t'') \tag{6}$$

$$r_{ab}(\Delta, t) = r_{ab}(\Delta, t') e^{i\Delta(t-t')} + \int_{t'}^t dt'' \frac{i\chi(t'')}{\sqrt{2}} e^{i\Delta(t-t'')} n_{ab}(\Delta, t'') \tag{7}$$

According to Eq. 6, the formation of the population difference at time  $t$  proceeds along three different ways. The first term on the right hand side of Eq. 6 corresponds to no interaction with the field. The second term results from an interaction of  $r_{ba}$  with the field at any time  $t''$  between  $t'$  and  $t$ . The coupling factor with the field is  $-i\chi(t'')/\sqrt{2}$ . The propagation factor of the free population difference from time  $t''$  to time  $t$  is unity. A similar term results from the interaction of  $r_{ab}$  with the field. The relevant coupling factor is  $i\chi^*(t'')/\sqrt{2}$ . According to Eq. 7, the formation of the atomic coherence at time  $t$  results either from no interaction with the field or from interaction of the level population difference with the field at time  $t''$ . The coupling factor is  $i\chi(t'')/\sqrt{2}$  and the propagation factor of the free atomic coherence from  $t''$  to  $t$  is  $\exp i\Delta(t-t'')$ . All these paths are summarized on the diagrams in Fig. 1. Iteration of Eqs. (6) and (7) would lead to expand  $n_{ab}(\Delta, t)$  and  $r_{ab}(\Delta, t)$  in powers of  $\chi(t)$  and  $\chi^*(t)$ . A rough representation of such an expansion is presented on Fig. 2. The summation properties of the series expansion are elucidated within the frame of a model which defines the stochastic character of the driving field.

## II - 2. The stochastic properties of the field

The stochastic nature of the electromagnetic field is contained in the Rabi frequency  $\chi(t)$  (Eq. 5) whose phase and amplitude are random functions of time. We assume that  $\chi(t)$  may be expressed as :

$$\chi(t) = \chi^\circ(t) \epsilon(t) \quad (8)$$

where  $\chi^\circ(t)$  is a slowly varying envelope and  $\epsilon(t)$  is a stationary random function. The envelope width is  $\tau_L$ . The following relations are satisfied by  $\epsilon(t)$  :

$$\begin{aligned} \langle \epsilon(t) \rangle &= 0 \\ \langle \epsilon(t) \epsilon^*(t - \tau) \rangle &= g(\tau) \\ \langle \epsilon(t) \epsilon(t - \tau) \rangle &= 0 \end{aligned} \quad (9)$$

where the brackets  $\langle \rangle$  stand for statistical average, and where  $g(\tau)$  is the autocorrelation function of  $\epsilon(t)$ , which is normalized in such a way that  $g(0)=1$ . The width of  $g(\tau)$  is  $\tau_c \ll \tau_L$ . To be more quantitative we set :

$$\tau_c = \int_0^\infty g(\tau) d\tau \quad (10)$$

The random process is supposed to be gaussian. Thus any statistical moment of the field may be expressed in terms of its two-time correlation function. Indeed, according to the factorization procedure [7,28] the following identity holds :

$$\langle \epsilon(t_1) \dots \epsilon(t_n) \epsilon^*(t_{n+1}) \dots \epsilon^*(t_{2n}) \rangle = \sum_p \frac{n!}{p} \langle \epsilon(t_j) \epsilon^*(t_{p(n+j)}) \rangle \quad (11)$$

where the sum runs over the permutations of  $t_{n+1} \dots t_{2n}$ . In addition, the following relation holds :

$$\langle \epsilon(t_1) \dots \epsilon(t_n) \epsilon^*(t_{n+1}) \dots \epsilon^*(t_p) \rangle = 0 \text{ if } |p - 2n| \geq 1 \quad (12)$$

We may now proceed to the averaging of the series expansion of  $n_{ab}$  and  $r_{ab}$ .

### II - 3. First statistical moments under single field excitation

Statistical averaging of  $n_{ab}(\Delta, t)$  and  $r_{ab}(\Delta, t)$  over the field realizations is achieved in accordance with Eqs. 11, 12. All the diagrams of Fig. 2 with odd number of vertices are averaged out. Each field  $\chi(t_i)$  can be correlated only with a complex conjugate field  $\chi^*(t_j)$ . Correlation between  $\chi(t_i)$  and  $\chi^*(t_j)$  contributes a factor  $\langle \chi(t_i)\chi^*(t_j) \rangle$  to the relevant diagram. Such a correlation is figured by a staple which connects time  $t_i$  to time  $t_j$  (Fig. 3). This staple may be regarded as the propagator of a fictitious particle, named a "ficton" by Bourret [27]. According to this picture, the ficton propagator along this staple is  $g(t_i - t_j)$  (Cf. Eq. 9). In other words the ficton is emitted and reabsorbed by the atomic line within the time  $\tau_c$ . Emission and reabsorption of such a ficton is reminiscent of the self-interaction of a charged particle through virtual photons. In the frame of Quantum Electrodynamics, these interactions represent the self-mass correction. By analogy we consider  $\langle n_{ab}(\Delta, t) \rangle$  and  $\langle r_{ab}(\Delta, t) \rangle$  as renormalized quantities which include the self interaction diagrams.

In order to calculate  $\langle n_{ab}(\Delta, t) \rangle$  and  $\langle r_{ab}(\Delta, t) \rangle$  we first consider the 1-ficton approximation which only accounts for the diagrams which are built with disjunct staples (Fig. 4). Construction of staples on  $n_{ab}$ -lines and on  $r_{ab}$ -lines need be examined separately. On  $n_{ab}$ -lines, emission of one ficton may convert  $n_{ab}$  into either  $r_{ab}$  or  $r_{ba}$  depending whether the staple starts with a  $\chi$ -type or a  $\chi^*$ -type interaction (Cf. Figs. 1, 3). The two paths contribute the total factor:

$$- [\chi^0(t)]^2 g(t' - t) \cos \Delta(t' - t)$$

for a staple which extends from time  $t'$  to time  $t$ . On a  $r_{ab}$ -line, conversion of  $r_{ab}$  into  $n_{ab}$  at ficton emission demands that the staple starts with a  $\chi^*$ -type interaction. Thus on a  $r_{ab}$ -line, each staple contributes the factor :

$$- [\chi^0(t)]^2 g(t' - t)/2$$

The analytic expression of a n-staple diagram on a  $n_{ab}$ -line reads :

$$A_n = (-)^n \int_{t'}^t dt_1 \int_0^{t-t_1} d\tau_1 [\chi^0(t_1)]^2 g(\tau_1) \cos \Delta\tau_1 \int_{t'}^{t_1} dt_2 \int_0^{t_1-t_2} d\tau_2 [\chi^0(t_2)]^2 g(\tau_2) \\ \cos \Delta\tau_2 \dots \int_{t'}^{t_{n-1}} dt_n \int_0^{t_{n-1}-t_n} d\tau_n [\chi^0(t_n)]^2 g(\tau_n) \cos \Delta\tau_n \quad (13)$$

Provided  $n\tau_c \ll t-t'$ , the upper boundary of the integration interval on  $\tau_i$  may be shifted to infinity. Then the above expression is changed into :

$$A_n = (-)^n \frac{1}{n!} \left\{ \int_{t'}^t dt'' [\chi^0(t'')]^2 \right\}^n \left( \int_0^\infty d\tau g(\tau) \cos \Delta\tau \right)^n \quad (14)$$

For the sake of simplicity we assume that the Doppler width  $\Delta_D$  is much smaller than the excitation pulse bandwidth  $\tau_c^{-1}$ . Then, Eq. 14 reduces to a more tractable form since :

$$\int_0^\infty d\tau g(\tau) \cos \Delta\tau \simeq \tau_c$$

This assumption is not a fundamental limitation of the theory that we develop. At this step of the calculation  $\tau_c$  appears to be smaller than any characteristic time of the field-free atomic motion. The following development of the diagrammatic picture requires that  $\tau_c$  be smaller than any characteristic time of the field-induced atomic motion.

The most important contributions in the summation over  $n$  arise from diagrams which satisfy  $A_n \geq 1$ , or equivalently

$$n \leq n_0 = \int_{t'}^t dt'' [\chi^0(t'')]^2 \tau_c \quad (15)$$

The condition  $n\tau_c \ll t-t'$  is thus fulfilled for the dominant diagrams provided :

$$[\chi^0(t)]^2 \tau_c^2 \ll 1 \quad (16)$$

The summation over  $n$  leads to the 1-ficton approximation for the propagation of  $\langle n_{ab} \rangle$  :

$$\langle n_{ab}(t) \rangle = \langle n_{ab}(t') \rangle \exp - \int_{t'}^t dt'' [\chi^0(t'')]^2 \tau_c \quad (17)$$

In the same way, one obtains the 1-ficton approximation for the propagation of  $\langle r_{ab}(t) \rangle$  :

$$\langle r_{ab}(t) \rangle = \langle r_{ab}(t') \rangle \exp (i\Delta(t-t') - \frac{1}{2} \int_{t'}^t dt'' [\chi^0(t'')]^2 \tau_c) \quad (18)$$

In addition to diagrams with disjunct staples, the 2-ficton approximation involves diagrams with conjunct and concentric staples (Fig. 5). With regard to a diagram which bears two disjunct staples between  $t'$  and  $t$ , a diagram with two conjunct or concentric staples is of order  $\tau_c/(t-t')$  because these overlapping staples are hindered to move with respect to each other along the time axis. The time interval  $t-t'$  being sized to the lifetime of  $\langle n_{ab} \rangle$  or  $\langle r_{ab} \rangle$ , which is  $[(\chi^0(t))^2 \tau_c]^{-1}$ , the condition for neglecting 2-ficton diagrams reads :

$$[\chi^0(t)]^2 \tau_c^2 \ll 1 \quad (19)$$

This requirement coincides with the condition (Eq. 16) that we previously introduced in order to complete the analytical calculation of the 1-ficton diagrams. Its involves the Kubo parameter of the stochastic perturbation,  $\chi^0(t)\tau_c$ . Condition (19) means that the characteristic time of the field-induced atomic evolution is much larger than  $\tau_c$ . This is the most important limitation in our calculation. As noticed in the introduction, this restriction on the field strength characterizes the so-called short-time correlation processes [15].

As noticed before, the free-line propagators are modified by the ficton field in a similar way as the free electron propagator is modified by the electromagnetic field in Quantum Electrodynamics Theory. The 1-ficton correction to the free-line propagator is reminiscent of the self-mass correction to the electron propagator. Thus, in the same way as mass renormalization is effected in Q. E. D., the lines may be renormalized by field-induced decay factors. These factors are given by Eqs. 17-18 which totally account for the short-range correlation interactions along a single line within the frame of the 1-ficton approximation. However, all possible interactions with the driving field are not included. First, calculation of

second order statistical moments such as  $\langle n_{ab}(\Delta, t) n_{ab}(\Delta', t) \rangle$  or  $\langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle$  involves correlation bridges between two different lines (Cf. Sec. III). Second, long-range correlation interactions must be accounted for when the driving field is a combination of time-delayed correlated fields. The point is that the renormalized propagators conveniently represent the atomic lines along any time interval between two field couplings which are not included in the self-interaction diagrams. In other words, the short-range correlation interactions along a single line are statistically independent of other interactions involved in the calculation of the atomic-quantity statistical moments. Thus we rename  $\langle n_{ab} \rangle$  as  $\overline{n_{ab}}$  and  $\langle r_{ab} \rangle$  as  $\overline{r_{ab}}$  in order to specify that only short-range correlation interactions on a single line are accounted for. Additional interactions are then described by the renormalized equations of motion

$$\begin{aligned} \dot{\overline{n_{ab}}} &= -\frac{i}{\sqrt{2}} (\chi \overline{r_{ba}} - \chi^* \overline{r_{ab}}) - (\chi^0)^2 r_c \overline{n_{ab}} \\ \dot{\overline{r_{ab}}} &= \frac{i}{\sqrt{2}} \chi \overline{n_{ab}} + i\Delta \overline{r_{ab}} - \frac{1}{2} (\chi^0)^2 r_c \overline{r_{ab}} \end{aligned} \quad (20)$$

Formal integration of these equations leads to a diagrammatic representation similar to that of Fig. 1, where the atomic free propagators have been replaced by the normalized ones. These diagrams are used to calculate the single-time two-atom correlation functions, in the situation where excitation is provided by a single field and in the situation where excitation is produced by two time-delayed correlated fields, with the provision that one of the fields is weak.

From now on, we assume that excitation is effected by square-envelope pulses. That means that  $\chi^0$  is time independent all along the pulse duration.



### III - TWO-LINE PROPAGATORS UNDER SINGLE FIELD EXCITATION

We aim at calculating moments  $\langle \bar{X}_i(\Delta, t) \bar{X}_j(\Delta', t) \rangle$  where  $\bar{X}_i(\Delta, t)$  stands for any quantity  $\overline{n_{ab}}(\Delta, t)$ ,  $\overline{r_{ab}}(\Delta, t)$  or  $\overline{r_{ba}}(\Delta, t)$ . It should be noticed that, according to the definition of  $\bar{X}_i(\Delta, t)$ , the moment  $\langle \bar{X}_i(\Delta, t) \bar{X}_j(\Delta', t) \rangle$  coincides with  $\langle X_i(\Delta, t) X_j(\Delta', t) \rangle$ . In the series expansion of  $\bar{X}_i(\Delta, \tau)$  in powers of  $\chi(t)$  and of  $\chi^*(t)$ , each term exhibits time-ordered couplings with the fields. However, the interactions which contribute to the build up of  $\bar{X}_i(\Delta, t)$  are not ordered with those which are involved in the build up of  $\bar{X}_j(\Delta', t)$ . Time ordering of interactions is represented on a diagram by ordering of vertices along a line. Thus the product of a term in the series expansion of  $\bar{X}_i(\Delta, t)$  with a term in the series expansion of  $\bar{X}_j(\Delta', t)$  is conveniently represented by a two-line diagram. Since correlations along a single line are allowed for by the renormalized propagators, the remaining correlations to be considered are those which connect the two lines.

Each free vertex on one line must be bound to a free vertex on the other line. Thus contributions to  $\langle \bar{X}_i(\Delta, t) \bar{X}_j(\Delta', t) \rangle$  only arise from the products of each term in the series expansion of  $\bar{X}_i(\Delta, t)$  with the same order term in the series expansion of  $\bar{X}_j(\Delta', t)$ . In the particle terminology, a bridge which connects two vertices can be regarded as the exchange of a ficton between the two atomic lines. In the 1-ficton exchange approximation, only disjunct bridges are to be considered [27]. The relevant first order diagrams are summarized on Fig. 6. We define a 9 component vector  $Y(\Delta, \Delta', t)$  through the following set of equations :

$$\begin{aligned}
 Y_0(\Delta, \Delta', t) &= \langle n_{ab}(\Delta, t) n_{ab}(\Delta', t) \rangle \\
 Y_1(\Delta, \Delta', t) &= \langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle \\
 Y_2(\Delta, \Delta', t) &= \langle n_{ab}(\Delta, t) r_{ab}(\Delta', t) \rangle \\
 Y_3(\Delta, \Delta', t) &= \langle r_{ab}(\Delta, t) n_{ab}(\Delta', t) \rangle \\
 Y_4(\Delta, \Delta', t) &= \langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ab}(\Delta', t) \rangle \\
 Y_i(\Delta, \Delta', t) &= Y_{-i}^*(\Delta, \Delta', t) \text{ where } 0 \leq i \leq 4
 \end{aligned} \tag{21}$$

The corresponding basis set reads :  $\{e_i\}$ . Then, the vector  $Y$  may be expressed as :  $Y(\Delta, \Delta', t) = \sum_{i=-4}^{+4} Y_i(\Delta, \Delta', t) e_i$ . Each diagram on Fig. 6 connects a component of  $Y$  at time  $t_1$  with a component of  $Y$  at time  $t_0$ . For instance the diagram 6(a) expresses the first order contribution to  $Y_0(\Delta, \Delta', t_0)$  which issues from  $Y_1(\Delta, \Delta', t_1)$ . Components  $Y_{\pm 4}$  are not present on Fig. 6 since no ficton exchange can occur between two  $\overline{r_{ab}}$  lines or between two  $\overline{r_{ba}}$  lines (at least in the frame of the 1-ficton exchange approximation).

In order to build the higher order diagrams, it is convenient to unite in a single diagram the two second-order contributions that propagate the atomic system from  $Y_0(\Delta, \Delta', t_1)$  to  $Y_0(\Delta, \Delta', t_0)$  (Fig. 7). The corresponding second order contribution to the propagator reads :

$$U_{00}^{(2)}(t_0 - t_1) = \exp[-2(t_0 - t_1)/T] \cdot$$

$$\frac{1}{4} [\chi^0]^4 \int_{t_1}^{t_0} dt' \int_{t_1}^{t_0} ds' \int_{t_1}^{t'} dt'' \int_{t_1}^{s'} ds'' g(t' - s') g(t'' - s'')$$

$$\left\{ \exp \left\{ [i\Delta + (2T)^{-1}](t' - t'') + [-i\Delta' + (2T)^{-1}](s' - s'') \right\} + \text{c.c.} \right\} \quad (22)$$

where  $T = [(\chi^0)^2 \tau_C]^{-1}$ . Then the integration variables  $(t', s')$  and  $(t'', s'')$  are replaced by  $(u' = \frac{t' + s'}{2}, v' = t' - s')$  and  $(u'' = \frac{t'' + s''}{2}, v'' = t'' - s'')$  respectively. Integration is performed over  $v'$  and  $v''$  under the assumption that  $\tau_C \ll (t_0 - t_1)$ . As already discussed in the paragraph devoted to single line diagrams, the assumption is equivalent to  $\chi^0 \tau_C \ll 1$ . One obtains :

$$U_{00}^{(2)}(t_0 - t_1) = T^{-2} \exp[-2(t_0 - t_1)/T] \times 2\text{Re} \left\{ \int_{t_1}^{t_0} dt' \int_{t_1}^{t'} dt'' \exp[i(\Delta - \Delta') + T^{-1}](t' - t'') \right\} \quad (23)$$

From this propagator component, we define the quantity  $V(t_0 - t_1)$  which is needed to build the higher order propagator components. It is represented on Fig. 7b. It is obtained from  $U_{00}^{(2)}(t_0 - t_1)$  by locking one of the ficton bridge to time  $t_0$ . It reads :

$$V(t_0 - t_1) = T^{-2} \exp[-2(t_0 - t_1)/T] \times 2\text{Re} \left\{ \int_0^{t_0 - t_1} d\tau \exp[i(\Delta - \Delta') + T^{-1}]\tau \right\} \quad (24)$$

Unlike  $U_{00}^{(2)}(t_1, t_0)$ , which is dimension-less, this latter quantity is inverse-time dimensioned.

The construction of the two-line propagators is illustrated on Fig. 8, when starting from  $Y_0, Y_{\pm 1}$ . On this figure each diagram represents the infinite sum of the propagator components which are built by linking a chain of  $V(t'-t)$ -terms with an input and an output elementary term. The summation procedure for the  $V(t'-t)$ -chains is specified on Fig. 9. Depending on the input and on the output lines, 9 different propagators are considered. The general expression of a propagator component with  $n$   $V(t'-t)$ -terms, which connects  $Y_i(\Delta, \Delta', t')$  to  $Y_j(\Delta, \Delta', t)$  is :

$$\int_{t'}^t dt_1 \int_{t'}^{t_1} dt_2 \dots \int_{t'}^{dt_n} A_i(t_{n+1}-t') V(t_n-t_{n+1}) \dots V(t_1-t_2) B_j(t-t_1)$$

where  $A_i(\tau)$  and  $B_j(\tau)$  stand for the two elementary terms which are linked to the chain of  $V(\tau)$ -diagrams. This propagator component is readily transformed into :

$$\int_0^\infty d\tau_0 \int_0^\infty d\tau_1 \dots \int_0^\infty d\tau_{n+1} \delta(t-t'-\tau_0-\tau_1-\dots-\tau_{n+1}) A_i(\tau_{n+1}) V(\tau_n) \dots V(\tau_1) B_j(\tau_0)$$

Making use of the standard representation of the  $\delta$  function  $\delta(x) = (2\pi)^{-1} \int e^{iQx} dQ$ , one reduces the propagator component to :

$$(2\pi)^{-1} \int dQ e^{iQ(t-t')} \hat{A}_i(Q) [\hat{V}(Q)]^n \hat{B}_j(Q)$$

where  $\hat{X}(Q) = \int_0^\infty d\tau X(\tau) e^{-iQ\tau}$  (25)

Summation over the  $n$ -order components, eventually leads to the propagator expression that works for diagrams (a) to (g) on Fig. 8

$$U_{ji}(t-t') = (2\pi)^{-1} \int dQ e^{iQ(t-t')} \hat{A}_i(Q) (1-\hat{V}(Q))^{-1} \hat{B}_j(Q) \quad (26)$$

Expressions for  $\hat{A}_i(Q)$  and  $\hat{B}_j(Q)$  are listed on Table 1. As regards diagrams (h) and (i) on Fig. 8, their expression is obtained by complementing Eq. 26

with an additional exchange-free term. The propagators are expected to satisfy the semi group property :

$$U_{ij}(\tau+\tau') = \sum_k U_{ik}(\tau) U_{kj}(\tau') \quad (27)$$

The propagators which are represented on Fig. 10 are calculated in the same way. Diagrams (a) and (b) are given by

$$U_{ji}(\tau) = (2\pi)^{-1} \int dQ e^{iQ\tau} \hat{A}_i(Q) (1-\hat{W}(Q))^{-1} \hat{B}_j(Q) \quad (28)$$

where  $\hat{W}(Q)$  is expressed on Table 1. Diagrams (c) and (d) read :

$$U_{ji}(\tau) = (2\pi)^{-1} \int dQ e^{iQ\tau} (1-\hat{W}(Q))^{-1} \hat{B}_j(Q) \quad (29)$$

The remaining diagrams are deduced from the symmetry properties of the propagators :

$$\begin{aligned} U_{01}(\tau, \Delta, \Delta') &= U_{10}(\tau, \Delta, \Delta') \\ U_{23}(\tau, \Delta, \Delta') &= U_{32}(\tau, \Delta, \Delta') \\ U_{22}(\tau, \Delta, \Delta') &= U_{33}(\tau, \Delta', \Delta) \\ U_{ij}(\tau, \Delta, \Delta') &= U_{-i-j}^*(\tau, \Delta, \Delta') \end{aligned} \quad (30)$$

Therefore, among the 81 propagators which connect the Y components, two of them are unity ( $U_{44} = U_{-4-4}=1$ ), 54 are zero, and the remaining 25 can be expressed in terms of 6 different functions. The subspace which is spanned by the vectors  $e_0, e_{\pm 1}$  is globally invariant since the propagation factors which connect any vector component  $Y_{i \leq 1}$  with any vector component  $Y_{i > 1}$  is zero. So is the subspace which is spanned by the vector set  $\{e_{\pm 2}, e_{\pm 3}\}$ .

Perturbative expansion of the propagators leads to the expressions which have been used extensively to describe the Optical Coherent Transient signals in the weak field regime [6-13]. As regards the strong field

problem which forms the subject of this paper, one gets some insight into it under the restriction that  $\Delta_D T \ll 1$ . Then the propagator expression reduces to simple form. Together with the previously mentioned condition  $\tau_c \ll T$ , it leads to restrain the discussion to the field strength domain where :

$$\Delta_D \tau_c \ll \Delta_D T \ll 1 \quad (31)$$

It is noteworthy that the condition  $\Delta_D T \ll 1$  is not inconsistent with the weak field condition that would read  $\tau \ll T$ . This latter condition states that the system hardly evolves during the time interval  $\tau$  under the action of the field, while the condition  $\Delta_D T \ll 1$  means that the Doppler dephasing between different velocity classes is much slower than the field-induced motion.

Then, to first order in  $\Omega T$ , where  $\Omega = \Delta - \Delta'$ , one obtains :

$$\begin{aligned} U_{00} &= \frac{2}{3} e^{-\frac{3\tau}{T}} + \frac{1}{3} e^{-\frac{2}{3} \Omega^2 \tau T} \\ U_{-11} &= (-3e^{-\frac{\tau}{T}} + e^{-\frac{3\tau}{T}} + 2e^{-\frac{2}{3} \Omega^2 \tau T})/6 \\ U_{11} &= -i\Omega T [3e^{-\frac{\tau}{T}} + e^{-\frac{3\tau}{T}} - 4e^{-\frac{2}{3} \Omega^2 \tau T}] / 6 \\ &\quad + [3e^{-\frac{\tau}{T}} + e^{-\frac{3\tau}{T}} + 2e^{-\frac{2}{3} \Omega^2 \tau T}] / 6 \\ U_{01} &= i\Omega T [-3e^{-\frac{\tau}{T}} + e^{-\frac{3\tau}{T}} + 2e^{-\frac{2}{3} \Omega^2 \tau T}] / 6 \\ &\quad + (e^{-\frac{2}{3} \Omega^2 \tau T} - e^{-\frac{3\tau}{T}}) / 3 \\ U_{22} &= [-\frac{i\Omega T}{2} \operatorname{sh} \frac{\tau}{T} + \operatorname{ch} \frac{\tau}{T}] \exp [i \frac{\Delta + \Delta'}{2} - \frac{3}{2T}] \tau \\ U_{23} &= \operatorname{sh} \frac{\tau}{T} \exp [i \frac{\Delta + \Delta'}{2} - \frac{3}{2T}] \tau \end{aligned} \quad (32)$$

Along the time interval  $\tau$ , the second order statistical moments decay. It is noteworthy that, in addition to terms with a lifetime of the order of  $T$ ,

some propagators exhibit terms which decay at a much slower rate. Propagators  $U_{ij}$  with  $|i|, |j| \leq 1$ , contain such terms. Propagators  $U_{ij}$  with  $|i|, |j| > 1$  only contain fast decaying terms. Implications of those features in coherent transient experiments have been explored in a recent paper [25] where a physical interpretation of the slowly varying terms is proposed. It relies on the Bloch vector representation. The Bloch vector components are :

$$u = (r_{ab} + r_{ba})/\sqrt{2} \quad v = i (r_{ba} - r_{ab})/\sqrt{2} \quad w = n_{ab}$$

Let  $\vec{B}(\Delta, t)$  be the Bloch vector which belongs to the velocity class with Doppler shift  $\Delta$ . Then the correlation between Bloch vectors with different Doppler shifts is expressed in terms of the atomic second order moments :

$$\langle \vec{B}(\Delta, t) \vec{B}(\Delta', t) \rangle = \langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle + \langle r_{ba}(\Delta, t) r_{ab}(\Delta', t) \rangle + \langle n_{ab}(\Delta, t) n_{ab}(\Delta', t) \rangle$$

The time evolution of  $\langle \vec{B}(\Delta, t) \vec{B}(\Delta', t) \rangle$  is straight derived from Eq. 32. It reads :

$$\langle \vec{B}(\Delta, t) \cdot \vec{B}(\Delta', t) \rangle = \langle \vec{B}(\Delta, 0) \cdot \vec{B}(\Delta', 0) \rangle \exp -\frac{2}{3} \Omega^2 T t + O(\Delta T)$$

When  $\Delta = \Delta'$ , the quantity  $\langle \vec{B}(\Delta, t) \cdot \vec{B}(\Delta', t) \rangle$  is constant since the Bloch vector length remains unaffected by the precession movement. A given Bloch vector loses memory of its initial direction after the duration  $T$  has elapsed. During this time interval, the angular separation between the Bloch vectors associated with the Doppler shifts  $\Delta$  and  $\Delta'$  increases by  $|\Delta - \Delta'| T$ . Thus, provided  $|\Delta - \Delta'| T \ll 1$ , the two Bloch vectors remain close to each other, while they diffuse a large angle in consequence of the driving field operation. Due to the erratic global disorientation of the two Bloch vectors which occurs on the time scale  $T$ , the angular separation after the time interval  $\tau$  is  $|\Delta - \Delta'| T \sqrt{\frac{\tau}{T}}$ . The correlation between the two velocity classes is lost when that angle is close to unity. This occurs after the time  $[(\Delta - \Delta')^2 T]^{-1}$ , which coincides with the characteristic time of the slowly decaying terms in Eqs. 32. Another information is derived by examining the Bloch vector motion. As already noticed, a given Bloch vector loses memory of its initial heading after the time  $T$ . In other words, after that time

interval has elapsed no correlation subsists between any two components of the Bloch vector. Therefore, the quantity  $\langle n_{ab}(\Delta, t) r_{ab}(\Delta, t) \rangle$  decays at the rate  $T^{-1}$ . All the more, so is the case when any two different components of two different velocity-class Bloch vectors are considered. Thus the propagators  $U_{23}$  and  $U_{22}$  do not contain slowly varying terms.

#### IV - EXCITATION BY TWO TIME-DELAYED CORRELATED PULSES

The model that we have developed so far relies on the *short correlation-time* assumption. We suppose that the atomic system scarcely evolves during the coherence time  $\tau_c$ . This condition requires that  $\tau_c \ll T$ . However *long correlation-time* features may occur even when this condition is fulfilled. So is the case when the sample is illuminated by two time-delayed pulses obtained by splitting a single light beam. Then the total composite field is represented by:

$$\mathcal{X}(t) = \mathcal{X}_1(t) + \mathcal{X}_2(t) \quad (33)$$

where  $\mathcal{X}_1(t)$  and  $\mathcal{X}_2(t)$  are the Rabi frequencies which are associated with the two pulses. The correlation between the two fields is expressed by:

$$\mathcal{X}_1(t) = \alpha \mathcal{X}_2(t+t_{12}) \quad (34)$$

where  $\alpha$  is an attenuation factor and  $t_{12}$  is the geometrical delay between the pulses. The correlation function of the composite field reads:

$$\begin{aligned} \langle \mathcal{X}(t) \mathcal{X}^*(t+\tau) \rangle = & \{ [\mathcal{X}_2^0(t)]^2 + |\alpha|^2 [\mathcal{X}_2^0(t+t_{12})]^2 \} g(\tau) \\ & + \alpha^* [\mathcal{X}_2^0(t)]^2 g(\tau+t_{12}) + \alpha [\mathcal{X}_2^0(t+t_{12})]^2 g(\tau-t_{12}) \end{aligned} \quad (35)$$

In addition to the expected central peak of width  $\tau_c$  located at  $\tau=0$ , the autocorrelation function exhibits two satellite peaks located at  $\tau=\pm t_{12}$ . Thus the *long correlation-time* situation is attained as soon as  $t_{12} > T$ , where  $T^{-1} = [\mathcal{X}_2^0(t)]^2 \tau_c$ , even if  $\tau_c \ll T$ . Besides, the composite field is a Non Markovian process. Indeed, let  $t'$  be a time such that  $t-t_{12} < t' < t$ . Then, the conditional probability density of the field at time  $t$ , given the value of the field at time  $t'$ , is affected by the knowledge of the



field value at an earlier time  $t-t_{12}$  [15]. In contrast with the previously developed methods [14-21], our diagrammatic picture proves adequate to deal with excitation by a Non-Markov, long correlation-time process. In this paper we adopt the restrictive condition that the first field  $\mathcal{X}_1(t)$  is weak. More precisely we assume that :

$$(\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C \tau_L \ll 1.$$

Within the frame of this assumption the time evolution of the first statistical moments of the atomic quantities have been considered in a previous paper [24]. The aim of this paragraph is to extend that analysis to the study of the second order moments, namely the single-time two-atom correlation functions of level-populations and atomic dipoles.

The calculation is developed under assumption of an angled-beam configuration. The wave vector  $\mathbf{k}_1$  of the field  $\mathcal{X}_1$  does not coincide with the wave vector  $\mathbf{k}_2$  of the field  $\mathcal{X}_2$ . In order to get rid of space-dependence in  $\mathcal{X}_2$ -type vertices, we change the definition of  $r_{ab}$  (Cf. Eq.5) into :

$$r_{ab} = \rho_{ab} \sqrt{2} \exp-i(\omega t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}) \quad (36)$$

Then the field  $\mathcal{X}$  which enters the equation of motion (Eq.4) must be changed into :

$$\mathcal{X}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{X}_1(t) \exp(i(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r}) + \mathcal{X}_2(t) \quad (37)$$

No additional adjustment of Eq.4 to angled-beam configuration is needed provided one can neglect the transverse Doppler effect and the diffusion-caused obliteration of the spatial grating which is engraved in the level population. It requires that the pulse duration  $\tau_L$ , the Doppler width  $\Delta_D$  and the angle  $(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2)$  between the beams satisfy the condition :

$$\Delta_D \tau_L(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) \ll 1$$

Then, to first order in  $\mathcal{X}_i(t)$ , the spatial dependence of the solutions to Eq.4 is expressed in the following expansion :

$$\begin{aligned} n_{ab}(\mathbf{r}, \Delta, t) &= \\ \hat{n}_{ab}(0; \Delta, t) + \hat{n}_{ab}(1; \Delta, t) \exp(-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) + \hat{n}_{ab}(-1; \Delta, t) \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) \\ r_{ab}(\mathbf{r}, \Delta, t) &= \\ \hat{r}_{ab}(0; \Delta, t) + \hat{r}_{ab}(1; \Delta, t) \exp(-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) + \hat{r}_{ab}(-1; \Delta, t) \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) \end{aligned} \quad (38)$$

where  $\mathbf{K} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ . We aim at calculating the moments :

$$\begin{aligned} Y_0(\mathbf{r}, \Delta; \mathbf{r}', \Delta'; t) &= \langle \hat{n}_{ab}(-1; \Delta, t) \hat{n}_{ab}(1; \Delta', t) \rangle \exp(i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')) \\ Y_1(\mathbf{r}, \Delta; \mathbf{r}', \Delta'; t) &= \langle \hat{r}_{ab}(-1; \Delta, t) \hat{r}_{ba}(1; \Delta', t) \rangle \exp(i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')) \\ Y_{-1}(\mathbf{r}, \Delta; \mathbf{r}', \Delta'; t) &= \langle \hat{r}_{ba}(-1; \Delta, t) \hat{r}_{ab}(1; \Delta', t) \rangle \exp(i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')) \end{aligned} \quad (39)$$

These moments are obtained by considering propagation along two-line diagrams. The upper line (respectively the lower line) is admittedly assigned to the atomic quantities which depend on  $\mathbf{r}$  and  $\Delta$  (respectively on  $\mathbf{r}'$  and  $\Delta'$ ).

The generic diagrams to be considered are represented on Fig. 11. The total field  $\mathcal{X}(t)$  cannot be regarded as a whole since it exhibits long-time correlation features. We have to separate it into its two components  $\mathcal{X}_1(\mathbf{r}, t)$  and  $\mathcal{X}_2(t)$  which are not accounted for on an equal footing. The two lines which represent the evolution of the atomic quantities are "dressed" by dotted lines. They stand for interactions with the field  $\mathcal{X}_2(t)$  which is allowed to be strong. Since  $\mathcal{X}_1(\mathbf{r}, t)$  is a weak field, it is branched only once on each line. Both pulses have rectangular envelopes. Illumination of the

sample by the field  $\mathcal{X}_1$ , and the field  $\mathcal{X}_2$  starts at time 0 and at time  $t_{12}$  respectively. The diagram on Fig.11(II) holds even when  $\mathcal{X}_1$  is not correlated with  $\mathcal{X}_2$  and it is referred to as the "incoherent contribution". On the diagrams which are illustrated by Fig.11(I) each interaction with  $\mathcal{X}_1$  at time  $t'$  is correlated with an interaction with  $\mathcal{X}_2^*$  which occurs at time  $t$ . These diagrams represent the "coherent contribution" to the two-line propagator. Correlation may link two interactions either on the same line (staples (c),(d), (e),(f) on Fig. 11(I)) or on two different lines (staples(a),(b),(g),(h) on Fig.11(I)). Different diagrams should be considered in order to account for all possible ordering of times  $t, t', s, s'$ . Besides, the field  $\mathcal{X}_1$  is branched on a line either before or after the second pulse has been switched on. In the following we assume that  $0 < t_{12} < t_0$ . Thus we may neglect contributions from diagrams where  $\mathcal{X}_1$  interacts with a line within the short time interval  $t_{12}$  before the beginning of the second pulse. As demanded, the space dependence of the propagators on Fig.11 consists in the phase factor  $\exp i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ . It proceeds from interactions with  $\mathcal{X}_1(\mathbf{r}, t')$  and with  $\mathcal{X}_1^*(\mathbf{r}', s')$  respectively on the upper and on the lower line. The conjugate phase factor should be obtained by branching  $\mathcal{X}_1^*(\mathbf{r}, t')$  and  $\mathcal{X}_1(\mathbf{r}', s')$  to the upper and to the lower line respectively.

Depending on the time ordering of  $(t', t)$  with respect to  $(s', s)$ , diagrams with conjunct or with disjunct staples should be considered in Fig.11(I). Let us first examine diagrams with disjunct staples. We start with the diagrams where interaction with  $\mathcal{X}_1$  at time  $t'$  on the upper line is correlated with interaction with  $\mathcal{X}_2^*$  at time  $t > t'$  on the lower line. The corresponding scheme is represented by the staple (a) on Fig.11(I). The main difficulty that we are faced with in the calculation of the diagrams arises from the variety of atomic quantities which are able to interact with  $\mathcal{X}_1$  and

$\mathcal{X}_1^*$  at the relevant vertices. Indeed  $\mathcal{X}_1$  may be branched either to  $n_{ab}$  or to  $r_{ab}$ , or to  $r_{ba}$ . Let us follow the evolution of the previously defined vector  $\mathbf{Y}$  from the beginning of the sample illumination. The vector  $\mathbf{Y}$  is driven by the propagators  $U_{ij}$  from initial time 0 up to the vertex at time  $t'$  where the first interaction with  $\mathcal{X}_1$  takes place. The initial non-zero components of  $\mathbf{Y}$  are  $Y_0, Y_{\pm 1}$ . As noticed in section III the corresponding subspace is globally invariant under the action of the propagators  $U_{ij}$ . Thus we denote  $\mathbf{A}(t', \Delta, \Delta')$  the  $3 \times 3$  matrix which is built with the relevant propagators  $U_{ij}$  and which drives the system from time 0 to  $t'$ . Then we define the "*conditional propagators*" which describe the system evolution from time  $t'$  to time  $t$ , given that it interacts with the fields  $\mathcal{X}_1(\mathbf{r}, t')$  and  $\mathcal{X}_2^*(t)$  at times  $t'$  and  $t$ . These propagators are illustrated on Fig.12. They are built with the help of the propagators  $U_{ij}$  by linking a free vertex to the upper in-going line and to the lower out-going line of  $U_{ij}$ . One observes that the *conditional propagators* also operate inside the subspace which is spanned by the previously defined vectors  $\mathbf{e}_0, \mathbf{e}_{\pm 1}$ . The propagators are regarded as elements of a  $3 \times 3$  matrix  $\kappa_{12}(t', t) \mathbf{B}(t-t', \Delta, \Delta')$ , where  $\kappa_{ij}(t, t') = \frac{1}{2} \mathcal{X}_i(t) \mathcal{X}_j^*(t')$ . The matrix elements are given by :

$$\begin{aligned} B_{10}(\tau, \Delta, \Delta') &= U_{33}(\tau, \Delta, \Delta') \\ B_{00}(\tau, \Delta, \Delta') &= -U_{23}(\tau, \Delta, \Delta') \end{aligned} \quad (40)$$

From the symmetry properties of  $U_{ij}$  (Cf. Eq. 30) it results that :

$$\begin{aligned} B_{0-1}(\tau, \Delta, \Delta') &= B_{10}(\tau, \Delta', \Delta) \\ B_{1-1}(\tau, \Delta, \Delta') &= B_{00}(\tau, \Delta', \Delta) \end{aligned} \quad (41)$$

The 5 remaining matrix elements are zero. Some other "*conditional propa-*

*gators*" are needed in order to calculate the contributions from the other diagrams which are illustrated on Fig.13. In addition to the propagators which are built from the matrix  $\mathbf{B}(\tau, \Delta, \Delta')$ , four other "*conditional propagators*" are expressed in terms of the matrices  $\mathbf{C}(\tau, \Delta, \Delta')$  and  $\mathbf{D}(\tau, \Delta, \Delta')$ . The relevant matrix elements are given by:

$$\begin{aligned}
 C_{00}(\tau, \Delta, \Delta') &= -U_{33}(\tau, \Delta, \Delta') \\
 C_{-1, -1}(\tau, \Delta, \Delta') &= C_{00}(\tau, \Delta', \Delta) \\
 C_{-10}(\tau, \Delta, \Delta') &= U_{23}(\tau, \Delta, \Delta') \\
 C_{0, -1}(\tau, \Delta, \Delta') &= C_{-10}(\tau, \Delta', \Delta) \\
 D_{00}(\tau, \Delta, \Delta') &= -U_{22}(\tau, \Delta, \Delta') \\
 D_{11}(\tau, \Delta, \Delta') &= D_{00}(\tau, \Delta', \Delta) \\
 D_{10}(\tau, \Delta, \Delta') &= U_{32}(\tau, \Delta, \Delta') \\
 D_{01}(\tau, \Delta, \Delta') &= D_{10}(\tau, \Delta', \Delta)
 \end{aligned} \tag{42}$$

In summary , the system is driven by the propagator  $\mathbf{A}$  from the beginning of illumination up to the  $\mathcal{X}_1$ -dependent staple. This staple is built in four different ways which are labeled (a),(b),(c),(d) on Fig.11(I). The four corresponding propagators are  $\langle \kappa_{12}(t', t) \rangle \mathbf{B}(t-t', \Delta, \Delta')$ ,  $\langle \kappa_{12}(t', t) \rangle \mathbf{B}^*(t-t', \Delta', \Delta)$ ,  $\langle \kappa_{12}(t', t) \rangle \mathbf{D}^*(t-t', \Delta', \Delta)$ , and  $\langle \kappa_{12}(t', t) \rangle \mathbf{C}(t-t', \Delta, \Delta')$  respectively. From the first staple up to the  $\mathcal{X}_1^*$ -dependent staple, the system is driven again by the propagator  $\mathbf{A}$ . The four different ways to realize this staple are labeled (e), (f), (g), (h) on Fig.11(I). They are described by the propagators

$\langle \kappa_{21}(s, s') \rangle \mathbf{C}^*(s-s', \Delta', \Delta)$ ,  $\langle \kappa_{21}(s, s') \rangle \mathbf{D}(s-s', \Delta, \Delta')$ ,  $\langle \kappa_{21}(s, s') \rangle \mathbf{B}(s-s', \Delta, \Delta')$  and  $\langle \kappa_{21}(s, s') \rangle \mathbf{B}^*(s-s', \Delta', \Delta)$ . Finally, the system is driven by the propagator  $\mathbf{A}$  during the interval between the end of the  $\mathcal{X}_1^*$ -dependent staple and the end of the lines at time  $t_0$ . The propagators  $\mathbf{B}^+$  and  $\mathbf{B}^\dagger$  which are sketched on Fig.13 are needed to calculate the diagrams with conjunct

staples.

The resulting expression of the disjunct-staple contribution to the "coherent part" of the two-line propagator, with  $t' < s'$ , is given by:

$$\mathbf{G}_d(t_0, \mathbf{r}, \Delta, \mathbf{r}', \Delta') = \mathbf{G}_d(t_0, \Delta, \Delta') \exp i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (43)$$

where :

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_d(t_0, \Delta, \Delta') &= \frac{1}{4} \langle \chi_1(t') \chi_2^*(t) \rangle \langle \chi_1^*(s') \chi_2(s) \rangle \\ &\times \{ \mathbf{A}(t_0 - s', \Delta, \Delta') [ \mathbf{B}(s' - s, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(s' - s, \Delta, \Delta') ] \mathbf{A}(s - t', \Delta, \Delta') \\ &\times [ \mathbf{B}^*(t' - t, \Delta', \Delta) + \mathbf{D}^*(t' - t, \Delta', \Delta) ] \mathbf{A}(t, \Delta, \Delta') \\ &+ \mathbf{A}(t_0 - s', \Delta, \Delta') [ \mathbf{B}(s' - s, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(s' - s, \Delta, \Delta') ] \mathbf{A}(s - t, \Delta, \Delta') \\ &\times [ \mathbf{B}(t - t', \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(t - t', \Delta, \Delta') ] \mathbf{A}(t', \Delta, \Delta') \\ &+ \mathbf{A}(t_0 - s, \Delta, \Delta') [ \mathbf{B}^*(s - s', \Delta', \Delta) + \mathbf{C}^*(s - s', \Delta', \Delta) ] \mathbf{A}(s' - t', \Delta, \Delta') \\ &\times [ \mathbf{B}^*(t' - t, \Delta', \Delta) + \mathbf{D}^*(t' - t, \Delta', \Delta) ] \mathbf{A}(t, \Delta, \Delta') \\ &+ \mathbf{A}(t_0 - s, \Delta, \Delta') [ \mathbf{B}^*(s - s', \Delta', \Delta) + \mathbf{C}^*(s - s', \Delta', \Delta) ] \mathbf{A}(s' - t, \Delta, \Delta') \\ &\times [ \mathbf{B}(t - t', \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(t - t', \Delta, \Delta') ] \mathbf{A}(t', \Delta, \Delta') \} \quad (44) \end{aligned}$$

In this expression, integration over  $s, t, s', t'$  is implicit. It should be performed from 0 to  $t_0$ , with the restriction that all the matrix temporal arguments are positive. Similar expressions can be obtained for the diagrams with conjunct staples and for the diagrams with disjunct staples with  $t' > s'$ . The incoherent propagator which is illustrated on Fig. 11(II) reads:

$$\mathbf{G}_{in}(t_0, \mathbf{r}, \Delta, \mathbf{r}', \Delta') = \mathbf{G}_{in}(t_0, \Delta, \Delta') \exp i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (45)$$

where

$$\mathbf{G}_{in}(t_0, \Delta, \Delta') = \int_0^\infty dt (\chi_1^0)^2 \tau_C \mathbf{A}(t_0 - t, \Delta, \Delta') \mathbf{M} \mathbf{A}(t, \Delta, \Delta') \quad (46)$$

where 
$$\mathbf{M} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}$$

In order to sketch out the strong field features, we consider an atomic system which has been irradiated for a time interval  $t_0 \gg T$ . Thus the electromagnetic field has driven it far from its initial position. The assumptions required to complete the calculation are summarized in the following list :

$$\Delta_D \tau_C \ll 1, t_{12} \ll t_0, T \ll t_0 \quad (47)$$

Under these conditions, the "coherent part" of the propagator is obtained in the Appendix, to second order in  $\Omega T$ . It reads :

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_{\text{coh}}(t_0, \Delta, \Delta') = & -(1/9) \mathbf{R} (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C t_0 \exp -[(2/3) \Omega^2 T t_0] \\ & \times \{ \beta (2-\beta) [1 - (2/3) \Omega^2 T t_0] + (1/3) [\beta^2 + (2-\beta)^2] \Omega^2 T t_0 \exp -t_{12}/T \} \quad (48) \end{aligned}$$

where 
$$\beta = (\tau_C)^{-1} \int_{t_{12}}^{\infty} d\tau g(\tau) \quad \text{and} \quad \mathbf{R} = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \end{bmatrix}$$

This expression includes contributions from diagrams with either conjunct or disjunct staples and with either  $t' > s'$  or  $t' < s'$ . As regards  $\mathbf{G}_{\text{in}}(t_0, \Delta, \Delta')$  one obtains :

$$\mathbf{G}_{\text{in}}(t_0, \Delta, \Delta') = (2/9) (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C t_0 \mathbf{R} \exp -[(2/3) \Omega^2 T t_0] \quad (49)$$

The  $t_{12}$  dependence of  $\mathbf{G}_{\text{coh}}$  strongly differs from that of the single-line

propagator that we have calculated in a previous paper [24]. In this paper, we have shown that the first order statistical moment of the field-induced population-grating increases as a function of  $t_{12}$  at the rate  $T^{-1}$ . According to the above Eq. 48, the second order statistical moments exhibit a much faster  $t_{12}$  dependence, under the same excitation conditions. The relevant dominant variation rate is now close to  $\tau_c^{-1} \gg T^{-1}$ . This feature results from combination and mutual cancellation of some diagrams which contribute to  $G_{coh}(t_0, \Delta, \Delta')$  (see Appendix).

Expressions for  $G_{in}$  and  $G_{coh}$  are used in the next section in order to analyse the  $t_{12}$  dependence of some coherent transient signals in the strong field regime.

## V - COHERENT TRANSIENT SIGNALS IN THE STRONG FIELD REGIME

The propagators which are calculated in the previous section are well suited to examine two classes of coherent transient processes, namely:

i) *two-pulse transients* : the sample is resonantly excited by a sequence of two angled-beamed correlated pulses. The wavevectors of the light beams are  $\mathbf{k}_1$  and  $\mathbf{k}_2$ . The macroscopic polarization which is induced in the sample radiates a signal field. Emission is detected in direction  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ . The signal intensity is expressed in terms of the two-atom, single-time correlation function of the atomic coherences. According to Eqs.(36, 38, 39), the component of this quantity which radiates in direction  $\mathbf{K} + \mathbf{k}_2$  reads:



$$\begin{aligned} \langle [\rho_{ba}(\mathbf{r}, \Delta, t) \rho_{ab}(\mathbf{r}', \Delta', t)]_{\mathbf{K}+\mathbf{k}_2} \rangle = \\ (1/2) \langle \hat{r}_{ba}(-1; \Delta, t) \hat{r}_{ab}(1; \Delta', t) \rangle \exp(i(\mathbf{K}+\mathbf{k}_2) \cdot (\mathbf{r}-\mathbf{r}')) \end{aligned} \quad (50)$$

ii) *three-pulse transient* : in addition to a macroscopic polarization, the above-mentioned two-pulse excitation generates a spatial grating inside the atomic level population. The Bragg vector of the grating is  $\mathbf{K}=\mathbf{k}_2-\mathbf{k}_1$ . A third beam with wavevector  $\mathbf{k}_3$  is diffracted in directions  $\mathbf{k}_3 \pm \mathbf{K}$ . If the third pulse is not correlated with the first two ones, the diffracted intensity in directions  $\mathbf{k}_3 \pm \mathbf{K}$  may be expressed in terms of the second order statistical moment of the grating component :

$$\langle \hat{n}_{ab}(-1; \Delta, t) \hat{n}_{ab}(1; \Delta', t) \rangle$$

In the following we determine the intensity of the *two-pulse transients*. We also determine the intensity of the *three-pulse transient* when the third pulse is either weak or strong.

The propagators that are calculated in Section IV are substituted into the expressions of second order moments. It results that the signal intensity which is radiated in direction  $\mathbf{K}+\mathbf{k}_2$  *within the duration of the excitation pulses* is proportional to :

$$\begin{aligned} \langle [\rho_{ba}(\mathbf{r}, \Delta, t) \rho_{ab}(\mathbf{r}', \Delta', t)]_{\mathbf{K}+\mathbf{k}_2} \rangle = (1/2) n_{ab}^{(0)}(\Delta) n_{ab}^{(0)}(\Delta') \\ \times [\mathbf{G}_{in}(t, \Delta, \Delta') + \mathbf{G}_{coh}(t, \Delta, \Delta')]_{-i0} \exp(i(\mathbf{K}+\mathbf{k}_2) \cdot (\mathbf{r}-\mathbf{r}')) \end{aligned} \quad (51)$$

where  $n_{ab}^{(0)}(\Delta)$  represents the initial velocity distribution of the level-population difference. The second order statistical moment of the population grating after extinction of the excitation pulses is given by:

$$\begin{aligned} \langle \hat{n}_{ab}(-1; \Delta, t) \hat{n}_{ab}(1; \Delta', t) \rangle = & n_{ab}^{(0)}(\Delta) n_{ab}^{(0)}(\Delta') \\ \times [ & \mathbf{G}_{in}(\tau_L, \Delta, \Delta') + \mathbf{G}_{coh}(\tau_L, \Delta, \Delta') ]_{\infty} \end{aligned} \quad (52)$$

Expressing the second order moments in terms of the propagators  $\mathbf{G}_{in}(t, \Delta, \Delta')$  and  $\mathbf{G}_{coh}(t, \Delta, \Delta')$  implies the fulfilment of the following requirements:

$$\Delta_D \tau_C \ll 1, \quad \tau_C \ll T, \quad |\alpha|^2 \tau_L \ll T, \quad t_{12} \ll \tau_L \quad (53)$$

The first two conditions state that the coherence time is much shorter than the characteristic time of evolution of the atomic system. The third condition specifies that the first field is considered to be weak provided  $(\chi_1^{(0)})^2 \tau_C \tau_L \ll 1$  (Cf. Eq. (34)). The fourth condition is needed to disregard the contributions from diagrams where interaction with  $\chi_1$  precedes the beginning of the second pulse. Simple analytical expressions are obtained for the propagators, under the strong field additional assumption:

$$T \ll \tau_L \quad (54)$$

The two pulse transient expression (51) contains two terms. The propagator  $\mathbf{G}_{coh}(t, \Delta, \Delta')$  originates the "coherent term". This term reflects the correlation between the two excitation fields. The propagator  $\mathbf{G}_{in}(t, \Delta, \Delta')$  gives rise to the "incoherent term" which exists even when the two fields are uncorrelated. The energy which is radiated in the coherent (respectively incoherent) term, *within the duration of the second pulse*, is denoted  $w_{coh}^{(2)}$  (respectively  $w_{incoh}^{(2)}$ ). When the strong field conditions (54) are fulfilled, the explicit expressions (48) and (49) can be used. In a vapor, at thermal equilibrium, integration over the velocity classes is easily completed. One obtains:

$$W^{(2)}_{\text{incoh}} \propto 2 (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C \tau_L S_1(\nu) \quad (55)$$

$$W^{(2)}_{\text{coh}} / W^{(2)}_{\text{incoh}} = - (1/2)\beta(2-\beta) + (\nu/3) [ S_2(\nu)/S_1(\nu) ] \{ 2\beta(2-\beta) - [(2-\beta)^2 + \beta^2] \exp(-t_{12}/T) \} \quad (56)$$

where :  $\nu = \Delta_D^2 T \tau_L$

$$S_1(\nu) = \int_0^1 x dx (1 + 8\nu x/3)^{-1/2}$$

$$S_2(\nu) = \int_0^1 x^2 dx (1 + 8\nu x/3)^{-3/2} \quad (57)$$

The  $t_{12}$ -dependence of the signal is illustrated on Fig.14. This signal profile is sensitive to the parameter  $\nu$ . When  $\nu \ll 1$ , which corresponds to very strong field excitation, the total signal intensity reduces to :

$$[W^{(2)}_{\text{incoh}} + W^{(2)}_{\text{coh}}] \propto (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C \tau_L [1 - (1/2)\beta(2-\beta)] \quad (58)$$

The signal exhibits a sharp dip around  $t_{12}=0$ . The dip width is close to  $\tau_C$ . When  $\nu \gg 1$ , the total signal intensity is changed into :

$$[W^{(2)}_{\text{incoh}} + W^{(2)}_{\text{coh}}] \propto \sqrt{(2/3\nu)} (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C \tau_L \times [1 - \exp(-t_{12}/T)] \quad (59)$$

Then, the signal exhibits a slower decay at rate  $T^{-1}$  as a function of  $t_{12}$ . It has been so far assumed that  $t_{12} > 0$ . It is no great matter to verify that  $W^{(2)}_{\text{coh}}$  is an even function of  $t_{12}$ , within the limits of the previously specified conditions (53) and (54). As regards the energy which is radiated in the signal *after the extinction of the second pulse*, it is obtained through the field-free propagator which drives the single-time two-atom correlation functions after the end of that pulse. It appears that this contribution to the

signal is of order  $(\Delta_D \tau_L)^{-1}$  with respect to the contribution which is emitted during the excitation pulses. The well specified behavior of the signal as a function of  $t_{12}$  should be observable in an experiment. Unfortunately, in the only reported two-pulse experiment in the strong field regime, both excitation pulses were strong [26].

In a three-pulse experiment, the signal energy which is generated in direction  $\mathbf{k}_3 + \mathbf{K}$  by a *weak probe pulse* reads [22]:

$$W^{(3)} \propto 2 (\chi_3^0)^2 \tau_C \int_0^\infty d\tau \int d\Delta \int d\Delta' \langle \hat{n}_{ab}(-1; \Delta, t) \hat{n}_{ab}(1; \Delta', t) \rangle \times \exp(i(\Delta' - \Delta)\tau) \quad (60)$$

According to Eq. (52), a coherent component and an incoherent one can be disclosed in the signal in the same way as in the two-pulse transient process. Provided the conditions (53) and (54) are satisfied by the first two pulses, one obtains:

$$W^{(3)}_{\text{incoh}} \propto 2 (\chi_3^0)^2 \tau_C \tau_L [(\chi_1^0)^2 \tau_C / \Delta_D] \quad (61)$$

$$W^{(3)}_{\text{coh}} / W^{(3)}_{\text{incoh}} = - (1/2)\beta(2 - \beta) \quad (62)$$

The three-pulse transient signal exhibits the same  $t_{12}$ -dependence as the two-pulse signal in the field strength domain where  $\nu \ll 1$ . However, unlike the two-pulse signal, the three-pulse one remains unchanged when  $\nu$  is varied. The signal profile is illustrated on Fig.15. The signal structure which is predicted by Eqs.(61) and (62) markedly contrasts with our experimental records in Caesium [22]. To be true, both correlated excitation pulses were intense in that experiment which hence cannot be validly examined in the light of the present theory.

The spatial grating generated by the two-pulse sequence can be probed by a strong non-overlapping pulse. We assume that the probe pulse illuminates the sample long after extinction of the two-pulse transient signal. That means that at the time the third pulse is switched on, the Doppler phase shift between velocity classes has grown so much that no signal can be generated from the dipoles induced by the first two pulses. Then the three-pulse signal only results from scattering of the probe pulse by the population grating which has been induced by the first two pulses. The two-atom single-time coherence correlation function which radiates in direction  $\mathbf{K}+\mathbf{k}_3$  *within the probe pulse duration* is expressed in terms of the grating according to :

$$\begin{aligned} < [\rho_{ba}(\mathbf{r}, \Delta, t) \rho_{ab}(\mathbf{r}', \Delta', t)]_{\mathbf{K}+\mathbf{k}_3} > = < \hat{n}_{ab}(-1; \Delta, t) \hat{n}_{ab}(1; \Delta', t) > \\ & \times U_{-10}(t-t_3) \exp(i(\mathbf{K}+\mathbf{k}_3) \cdot (\mathbf{r}-\mathbf{r}')) \end{aligned} \quad (63)$$

Where  $t_3$  stands for the starting time of the probe. With the strong field limit expression for  $U_{-10}(t-t_3)$ , the energy emitted in the signal within the probe duration reads:

$$W_{\text{incoh}}^{(3)} \propto (2/3) (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C \tau_L S_0(\nu) \quad (64)$$

$$\begin{aligned} W_{\text{coh}}^{(3)} / W_{\text{incoh}}^{(3)} = & - (1/2) \beta (2-\beta) \\ & + (\nu/3) [ S_4(\nu) / S_0(\nu) ] \{ 2\beta (2-\beta) - [(2-\beta)^2 + \beta^2] \exp(-t_{12}/T) \} \end{aligned} \quad (65)$$

where

$$\begin{aligned} S_0(\nu) &= \int_0^1 dx (1 + 8\nu(1+x)/3)^{-1/2} \\ S_4(\nu) &= \int_0^1 dx (1 + 8\nu(1+x)/3)^{-3/2} \end{aligned} \quad (66)$$

Except for a nearly  $\nu$ -independent factor,  $S_0(\nu)/3S_1(\nu)$ , the incoherent contribution to this signal coincides with the corresponding contribution to the two-pulse transient signal. The factor  $1/3$  results from our assumption that the time delay between the first two pulses and the third one is much larger than the inverse Doppler width. Then no signal can be generated from the oscillating dipoles induced by the first two pulses. The observable signal only results from diffraction of the third pulse by the spatial grating stored in the level populations. Besides the signal generated by a weak-strong-weak pulse sequence can be compared with the signal produced by a weak-strong-strong pulse illumination. Except for the factor  $(\chi_3^0)^2 \tau_c \tau_L$  which simply reflects the perturbative expansion in the former signal, the two signals mainly differ by the factor  $S_0(\nu) \Delta_D \tau_L / 3$  (Cf. Eqs. (61,64). This factor reflects the phase-locking property of strong broad-bandwidth excitation that we have discussed elsewhere [25]. In the weak probe field regime, excitation is performed coherently over  $\tau_L^{-1}$ -wide spectral slices. The  $\Delta_D \tau_L$  slices contribute incoherently to the signal which appears to equate  $\Delta_D \tau_L$  times the contribution of an elementary slice. In the strong probe field regime, coherent excitation spans a spectral domain  $\chi_3^0 \sqrt{\tau_c / \tau_L}$ . Then, contributions from elementary slices add coherently inside this coherence width. The contribution of a coherent domain is proportional to the *square* of the elementary slice number inside it. The resulting signal intensity therefore equates  $\chi_3^0 \Delta_D \tau_L \sqrt{\tau_c \tau_L}$  (respectively  $(\Delta_D \tau_L)^2$ ) times the contribution of an elementary slice, according as  $\chi_3^0 \sqrt{\tau_c / \tau_L}$  is smaller (respectively larger) than the Doppler width  $\Delta_D$ . Therefore, a coherence-enhancement factor  $\chi_3^0 \sqrt{\tau_c \tau_L}$  or  $\Delta_D \tau_L$  (depending on the relative size of  $\chi_3^0 \sqrt{\tau_c / \tau_L}$  and  $\Delta_D$ ) is expected to arise. The factor  $S_0(\nu) \Delta_D \tau_L / 3$  exhibits this expected form.

## VI-CONCLUSION

The diagrammatic method that we have developed enables us to calculate a variety of optical coherent transient signals in the strong stochastic field regime. In processes which involve time-delayed correlated pulses, we have been able to explore the *long correlation-time* domain, although the driving composite field is a *Non Markov process*. We predict that the strength of the stochastic field affects the signal intensity dependence on the time delay between the correlated pulses. The time scale of this feature is determined.

Our approach suffers from two limitations. First, excitation by two time delayed correlated fields is described under assumption that one of the fields is weak. Second, each one of the correlated fields is supposed to be, on its own, a short time correlation process. Both limitations have been transgressed in actual experiments [22,26]. The jump process model [18] seems to be a promising way to overcome the second limitation.

## APPENDIX-CALCULATION OF THE TWO-FIELD, TWO LINE PROPAGATOR

The propagator  $\mathbf{A}(\tau, \Delta, \Delta')$  reads:

$$\mathbf{A}(\tau, \Delta, \Delta') = \mathbf{A}_f(\tau, \Delta, \Delta') + \mathbf{A}_s(\tau, \Delta, \Delta') \quad (\text{A1})$$

where  $\mathbf{A}_f$  contains the fast time-decaying terms while  $\mathbf{A}_s$  is the slowly time-varying component. To first order in  $\Omega T$  it reads:

$$\mathbf{A}_s(\tau, \Delta, \Delta') = (1/3)[\mathbf{R} + i \Omega T \mathbf{S} + (\Omega T)^2 \mathbf{T}] \exp[-(2/3)\Omega^2 T \tau] \quad (\text{A2})$$

$$\text{where: } \mathbf{R} = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \end{bmatrix}, \quad \mathbf{S} = \begin{bmatrix} -2 & -1 & 0 \\ -1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 2 \end{bmatrix} \text{ and } \mathbf{T} = (1/9) \begin{bmatrix} -5 & 7 & 13 \\ 7 & 10 & 7 \\ 13 & 7 & -5 \end{bmatrix}$$

The propagator  $\mathbf{A}(\tau, \Delta, \Delta')$  reduces to  $\mathbf{A}_s(\tau, \Delta, \Delta')$  when  $\tau \gg T$ . We notice that:

$$\begin{aligned} \mathbf{R} [ \mathbf{B}(\tau, \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(\tau, \Delta, \Delta') ] &= 0 \\ [ \mathbf{B}(\tau, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(\tau, \Delta, \Delta') ] \mathbf{R} &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A3})$$

In addition,  $\mathbf{S} [ \mathbf{B}(\tau, \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(\tau, \Delta, \Delta') ] \mathbf{R}$  and  $\mathbf{R} [ \mathbf{B}(\tau, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(\tau, \Delta, \Delta') ] \mathbf{S}$  are proportional to  $\mathbf{R}$ . As a consequence the following identities hold:

$$\begin{aligned} [ \mathbf{B}(\tau_1, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(\tau_1, \Delta, \Delta') ] \mathbf{S} [ \mathbf{B}(\tau_2, \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(\tau_2, \Delta, \Delta') ] \mathbf{R} &= 0 \\ \mathbf{R} [ \mathbf{B}(\tau_1, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(\tau_1, \Delta, \Delta') ] \mathbf{S} [ \mathbf{B}(\tau_2, \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(\tau_2, \Delta, \Delta') ] &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A4})$$

To zero order in  $\Omega T$ , and within the limits of the conditions (46), the leading contributions to the propagator  $\mathbf{G}_d^{(0)}(t_0, \Delta, \Delta')$  arise from the diagrams where the system is driven by  $\mathbf{A}_s(\tau, \Delta, \Delta')$  before the first and after the second  $\mathcal{X}_1$ -dependent staple. Indeed, these diagrams contribute for any position of the couple of  $\mathcal{X}_1$ -dependent staples all along the time



axis. Then Eq.44 reduces to:

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_d^{(0)}(t_0, \Delta, \Delta') &= (1/36)t_0 \langle \mathbf{X}_1(t') \mathbf{X}_2^*(t) \rangle \langle \mathbf{X}_1^*(s') \mathbf{X}_2(s) \rangle \exp -[(2/3)\Omega^2 T t_0] \\ &\mathbf{R} [\mathbf{B}(s-s', \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(s-s', \Delta, \Delta')] \mathbf{A}_f(s'-t, \Delta, \Delta') [\mathbf{B}(t-t', \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(t-t', \Delta, \Delta')] \mathbf{R} \\ &+ O((\mathbf{X}_1^0)^2 \tau_c T) \end{aligned} \quad (\text{A5})$$

The terms of order  $(\mathbf{X}_1^0)^2 \tau_c T$  arise from the diagrams where the propagator  $\mathbf{A}$  reduces to its fast decaying component  $\mathbf{A}_f$  along two of the three time intervals where the system is driven by  $\mathbf{A}$ . Explicit integration over the time variables, and substitution for  $\mathbf{X}_1(t)$  with its expression (33) lead to:

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_d^{(0)}(t_0, \Delta, \Delta') &= (1/36) t_0 (\mathbf{X}_1^0)^2 (\mathbf{X}_2^0)^2 \exp - [(2/3)\Omega^2 T t_0] \\ &\times \int_0^\infty d\tau_3 \int_0^\infty d\tau_2 \int_0^\infty d\tau_1 g(\tau_1 - t_{12}) g(\tau_2 + t_{12}) \\ &\times \mathbf{R} [\mathbf{B}(\tau_2, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(\tau_2, \Delta, \Delta')] \mathbf{A}_f(\tau_3, \Delta, \Delta') [\mathbf{B}(\tau_1, \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(\tau_1, \Delta, \Delta')] \mathbf{R} \\ &+ O((\mathbf{X}_1^0)^2 \tau_c T) \end{aligned} \quad (\text{A6})$$

Occurrence of the factor  $g(\tau_1 - t_{12}) g(\tau_2 + t_{12})$  in Eq. A6 implies that dominant contribution to  $\mathbf{G}_d^{(0)}$  originates from the integration domain  $(\tau_1, \tau_2) \ll \tau_c$ . Thus, the matrices  $\mathbf{B}$ ,  $\mathbf{C}$ ,  $\mathbf{D}$  can be replaced by:

$$\begin{aligned} \mathbf{B}(0, \Delta, \Delta') &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{bmatrix} \\ \mathbf{C}(0, \Delta, \Delta') &= \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (\text{A7})$$

$$\mathbf{D}(\tau_2, \Delta, \Delta') = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}$$

Summation over  $\tau_1, \tau_2, \tau_3$  is easily achieved and it leads to:

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_d^{(0)}(t_0, \Delta, \Delta') = & \\ & -(1/18) \beta (2-\beta) \mathbf{R} (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C t_0 \exp - [(2/3)\Omega^2 T t_0] \\ & + O((\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C T) \end{aligned} \quad (\text{A8})$$

$$\text{where } \beta = (\tau_C)^{-1} \int_{t_{12}}^{\infty} d\tau' g(\tau) \quad (\text{A9})$$

The same expression is obtained for diagrams where  $t' < s'$ . Besides, the contribution of the conjunct-staple diagrams is of order  $(\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C T$ .

To first order in  $\Omega T$ , the leading term should issue from the diagrams where the system is driven by the  $\Omega T$ -zero-order component of  $\mathbf{A}_S(\tau, \Delta, \Delta')$  between the staples. Due to Eq.(A4), this contribution cancels. It results that the first order contribution in  $\Omega T$  is at most  $O(\Omega T (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C t_0)$ .

To second order in  $\Omega T$ , two dominant contributions are taken into account. The first one arises from the  $\Omega T$ -first order component of  $\mathbf{A}_S(\tau, \Delta, \Delta')$ . It corresponds to the diagrams where, along two of the three intervals where  $\mathbf{A}_S(\tau, \Delta, \Delta')$  drives the system, this propagator reduces to its first order component. The second contribution arises from the  $\Omega T$ -second order component of  $\mathbf{A}_S(\tau, \Delta, \Delta')$ . On the corresponding diagram the system is driven by the zero-order component of  $\mathbf{A}_S(\tau, \Delta, \Delta')$  before the

first and after the second  $\mathcal{X}_1$ -dependent staples, and is driven by the second-order component of  $\mathbf{A}_S(\tau, \Delta, \Delta')$  between those two staples. Then, using Eqs (A3), (A4), one obtains:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{G}_d^{(0)}(t_0, \Delta, \Delta') = & \\
 & -(\Omega T)^2 \times (1/216) \times t_0^2 \langle \mathcal{X}_1(t') \mathcal{X}_2^*(t) \rangle \langle \mathcal{X}_1^*(s') \mathcal{X}_2(s) \rangle \exp -[(2/3)\Omega^2 T t_0] \\
 & \times \{ \mathbf{R} [\mathbf{B}(s'-s, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(s'-s, \Delta, \Delta')] \mathbf{S} [\mathbf{B}^*(t'-t, \Delta', \Delta) + \mathbf{D}^*(t'-t, \Delta', \Delta)] \mathbf{S} \\
 & + \mathbf{S} [\mathbf{B}^*(s-s', \Delta', \Delta) + \mathbf{C}^*(s-s', \Delta', \Delta)] \mathbf{R} [\mathbf{B}^*(t'-t, \Delta', \Delta) + \mathbf{D}^*(t'-t, \Delta', \Delta)] \mathbf{S} \\
 & + \mathbf{S} [\mathbf{B}^*(s-s', \Delta', \Delta) + \mathbf{C}^*(s-s', \Delta', \Delta)] \mathbf{S} [\mathbf{B}(t-t', \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(t-t', \Delta, \Delta')] \mathbf{R} \\
 & + 2 \mathbf{R} [\mathbf{B}(s'-s, \Delta, \Delta') + \mathbf{D}(s'-s, \Delta, \Delta')] \mathbf{T} [\mathbf{B}(t-t', \Delta, \Delta') + \mathbf{C}(t-t', \Delta, \Delta')] \mathbf{R} \} \\
 & + O((\Omega T \mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C t_0). \tag{A10}
 \end{aligned}$$

Explicit integration over the time variables leads to:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{G}_d^{(0)}(t_0, \Delta, \Delta') = & (\Omega T)^2 (1/54) t_0^2 \mathbf{R} (\mathcal{X}_1^0)^2 (\mathcal{X}_2^0)^2 \exp -[(2/3)\Omega^2 T t_0] \\
 & \times \int_0^\infty d\tau_2 \int_0^\infty d\tau_1 \{ 2 g(\tau_1 - t_{12}) g(\tau_2 + t_{12}) \\
 & - [ g(\tau_1 - t_{12}) g(\tau_2 - t_{12}) + g(\tau_1 + t_{12}) g(\tau_2 + t_{12}) ] \exp -t_{12}/T \} \\
 & + O((\Omega T \mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C t_0) \tag{A11}
 \end{aligned}$$

The same expression is obtained for diagrams where  $t' > s'$ . Finally, the coherent contribution to the two line propagator is given by:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{G}_{\text{coh}}(t_0, \Delta, \Delta') = & -(1/9) \mathbf{R} (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C t_0 \exp -[(2/3)\Omega^2 T t_0] \\
 & \times \{ \beta (2-\beta) [1 - (2/3)\Omega^2 T t_0] + (1/3) [\beta^2 + (2-\beta)^2] \Omega^2 T t_0 \exp -t_{12}/T \} \\
 & + O(\Omega T (\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C t_0) + O((\mathcal{X}_1^0)^2 \tau_C T) \tag{A12}
 \end{aligned}$$



## REFERENCES

- [1] N. A. Kurnit, I. D. Abella, S. R. Hartmann ,  
Phys. Rev. Lett. 13, 567 (1964).
- [2] R. G. Brewer and R. L. Shoemaker,  
Phys. Rev. 27, 631 (1971).
- [3] R. G. Brewer and R. L. Shoemaker,  
Phys. Rev. A 6, 2001 (1972).
- [4] P. F. Liao, N. P. Economou, R. R. Freeman,  
Phys. Rev. Lett. 39, 1473 (1977).
- [5] A. Laubereau and W. Kaiser,  
Rev. Mod. Phys. 50 607 (1978).
- [6] S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara and M. Matsuoka,  
Phys. Rev. A 29, 2286 (1984).
- [7] N. Morita and T. Yajima,  
Phys. Rev. A 30, 2525 (1984).
- [8] M. Fujiwara, R. Kuroda, H. Nakatsuka,  
J. Opt. Soc. Am. B 2, 1634 (1985).
- [9] J. E. Golub, T. W. Mossberg,  
J. Opt. Soc. Am. B 3, 554 (1986).
- [10] T. Hattori, A. Terazaki and T. Kobayashi,  
Phys. Rev. A 35, 715 (1987).
- [11] K. Kurokawa, T. Hattori and T. Kobayashi,  
Phys. Rev. A 36, 1298 (1987).
- [12] M. Defour, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët,  
J. Opt. Soc. Am. B 3, 544 (1986).
- [13] J. E. Golub and T. W. Mossberg,  
Opt. Lett. 11, 431 (1986).
- [14] A. Brissaud and U. Frisch,  
J. Math. Phys. 15, 524 (1974).

- [15] N. G. Van Kampen,  
Stochastic Processes in Physics and Chemistry, Chap. XIV, (North  
Holland, Amsterdam, 1981).
- [16] H. Nakatsuka, J. Okada, M. Matsuoka,  
J. Phys. Soc. of Japan 37, 1406 (1974).
- [17] P. Agostini, A. T. Georges, S. S. Wheatley, P. Lambropoulos, M. D.  
Levenson,  
J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 11, 1733 (1978).
- [18] B. W. Shore,  
J. Opt. Soc. Am. B 1 176 (1984).
- [19] A. I. Burshtein,  
Sov. Phys. JETP 22, 939 (1966) ; 21, 567 (1965) ;  
A. I. Burshtein and Yu. S. Oseledchik,  
Sov. Phys. JETP 24, 716 (1967) ;  
Z. D. Zusman and A. I. Burshtein,  
Sov. Phys. JETP 34, 520 (1972).
- [20] P. W. Anderson,  
J. Phys. Soc. Japan 9, 316 (1954).
- [21] R. Kubo,  
J. Phys. Soc. Japan 9, 935 (1954).
- [22] M. Defour, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët,  
Phys. Rev. A 36, 5226 (1987).
- [23] R. G. Friedberg and S. R. Hartmann,  
to be published in J. Phys. B : Atom Mol. Phys.
- [24] P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët,  
to be published in J. Opt. Soc. Am.
- [25] A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, P. Tchénio,  
to be published.
- [26] R. Beach, D. De Beer, S. R. Hartmann,  
Phys. Rev. A 32, 3467 (1985).
- [27] R. C. Bourret,  
Nuovo Cimento 26, 1 (1962).
- [28] R. J. Glauber,  
Phys. Rev. 131 2766 (1963).

$$\hat{V}(Q) = T^{-2} (2T^{-1} + iQ)^{-1} [(T^{-1} + i(Q+\Delta'-\Delta))^{-1} + (T^{-1} + i(Q+\Delta-\Delta'))^{-1}]$$

$$\hat{W}(Q) = T^{-2} \left[ \frac{3}{2} T^{-1} + i(Q-\Delta) \right]^{-1} \left[ \frac{3}{2} T^{-1} + i(Q-\Delta') \right]^{-1}$$

i	0	1	2	3
$\hat{A}_i(Q)$	1	$T^{-1}(T^{-1}+i(Q+\Delta'-\Delta))^{-1}$	$T^{-1}(\frac{3}{2}T^{-1}+i(Q-\Delta'))^{-1}$	$T^{-1}(\frac{3}{2}T^{-1}+i(Q-\Delta))^{-1}$
$\hat{B}_i(Q)$	$[iQ+2T^{-1}]^{-1}$	$\hat{A}_1(Q)(iQ+2T^{-1})^{-1}$	$T\hat{A}_2(Q)$	$T\hat{A}_3(Q)$

$$\hat{A}_{-j}(Q, \Delta, \Delta') = \hat{A}_j^*(-Q, \Delta, \Delta')$$

$$\hat{B}_{-j}(Q, \Delta, \Delta') = \hat{B}_j^*(-Q, \Delta, \Delta')$$

Table 1

## FIGURE CAPTIONS

Figure 1 - Diagrammatic representation of the integral equation of motion. The diagrams (a), (b), (c) illustrate the contributions to  $n_{ab}(\Delta, t)$ ,  $r_{ab}(\Delta, t)$ ,  $r_{ba}(\Delta, t)$  respectively. On each vertex, the vertical line refers to an interaction with the electromagnetic field which occurs at any time  $t''$  between  $t'$  and  $t$ . An interaction is weighted by a factor which depends on the instantaneous Rabi frequency  $\chi(t'')$ . A single (double) horizontal line refers to the population (coherence) time propagation.

Figure 2 - Schematic representation for the series expansion of the atomic propagators. The time propagation is figured along vertical lines. The upper (lower) series refer to the formation of population (coherence) at time  $t$  in terms of the atomic quantities at time  $t'$ .

Figure 3 - Single line correlation staples. This figure represents the different atomic propagation lines which are able to emit and absorb a photon at times  $t_i$  and  $t_j$ .

Figure 4 - Series expansion of the single line atomic propagators in the 1-photon approximation. The upper (lower) series represents the population (coherence) propagator from  $t'$  to  $t$ .

Figure 5 - Conjunct and concentric correlation staples.

Figure 6 - Two-lines correlation. Each diagram represents the lowest order two-line correlation for a given couple of in-going and out-going atomic time-propagation lines. The vertical lines stand for the photon propagator. These diagrams are the first order components of the two-line atomic propagators.

Figure 7 - (a) Second order components of the two-line propagator with population-type in-going and out-going lines. The two labeled diagrams on the left are united into the single dumb diagram on the right.

(b) Representation of the quantity  $V(t_0-t_1)$  which is needed to build higher order components of the two-line propagators.



Figure 8 - Two-line propagators  $U_{ij}(t_0-t_1)$ , for  $i, j \leq 1$ . The parentheses represent an infinite summation over  $n$ , of  $n$ -link chains formed by the concatenation of diagrams  $V(t_i-t_j)$ .

Figure 9 - Expansion of the chain summation which is figured by parentheses on Fig. 8.

Figure 10 - Two-line propagators  $U_{ij}(t_0-t_1)$ , for  $1 < i, j \leq 3$ . The parentheses represent an infinite summation over  $n$  of  $n$ -link chains formed by concatenation of diagrams  $W(t_i-t_j)$ .

Figure 11 - Two-line diagrams for excitation by time-delayed overlapping pulses. The atomic time-propagation lines are "dressed" by dotted lines which represent interactions with the strong field  $\mathcal{X}_2$ . The weak field  $\mathcal{X}_1$  is branched only once on each line. Coupling with  $\mathcal{X}_1$  is correlated either with an interaction with  $\mathcal{X}_2^*$  on either line (I), or with an interaction with  $\mathcal{X}_1^*$  on the other line (II).

Figure 12 - Connection between  $U_{ij}$  and  $B_{kl}$ . The conditional propagator  $\kappa_{\mu\nu}(t, s) B_{kl}(s-t, \Delta, \Delta')$  is built with the help of a propagator  $U_{ij}(s-t, \Delta, \Delta')$  by linking free vertices on the upper in-going line and the lower out-going line of  $U_{ij}$ . On these diagrams,  $U_{ij}$  is represented by a dotted-line rectangle. All the available diagrams are drawn.

Figure 13 - Representation of the various conditional propagators which are built by branching two fields on a two line propagator.

Figure 14 - Signal profile of the two-pulse coherent transient as a function of the delay between the pulses. An exponential form  $g(\tau) = \exp(-\tau/\tau_c)$  is assumed for the correlation function. The three curves correspond to different values of the field strength. curve 1:  $T/\tau_c = 10$ ,  $\nu = 0.1$ ; curve 2:  $T/\tau_c = 100$ ,  $\nu = 1$ ; curve 3:  $T/\tau_c = 1000$ ,  $\nu = 10$ .

Figure 15 - Signal profile of the three-pulse coherent transient as a function of the delay between the first two pulses. A single expression holds throughout the field-strength domain which is defined by the condition  $\tau_c \ll T \ll \tau_L$ . The function  $g(\tau)$  which is used to calculate the curve is the same as in Fig. 14.

**TABLE CAPTION**

Table 1 - Analytical expressions of the functions  $A_i(Q)$  and  $B_i(Q)$  which are involved in the calculation of the two-line propagators  $U_{ij}(t-t')$ .



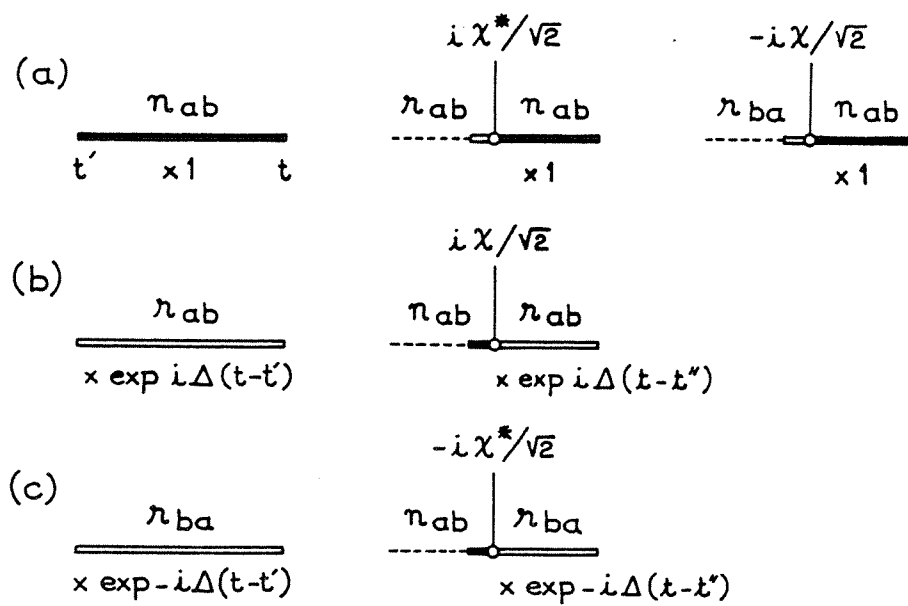


Figure 1

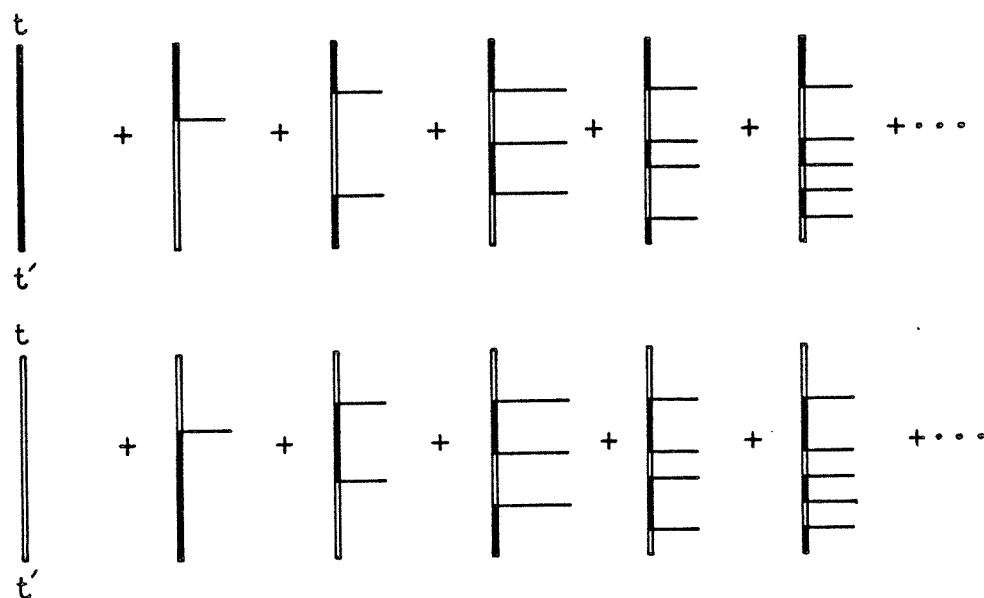


Figure 2

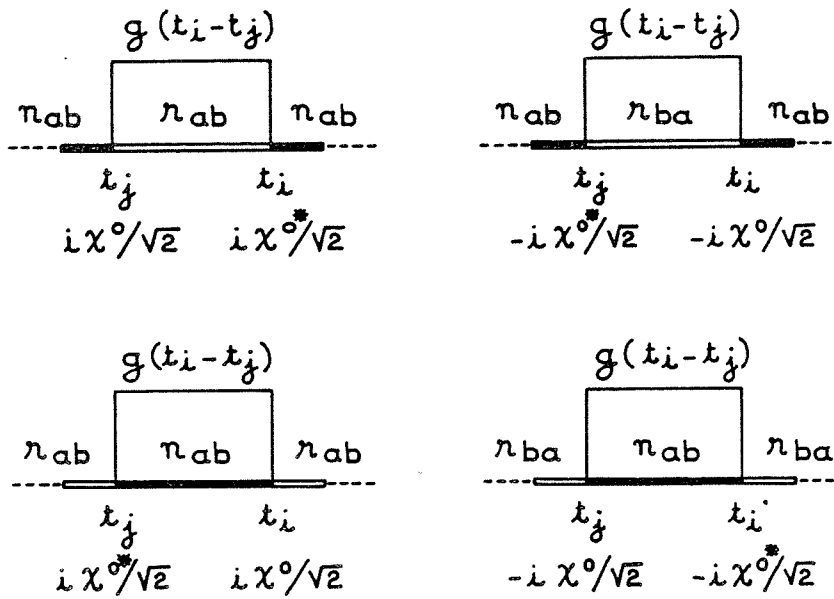


Figure 3

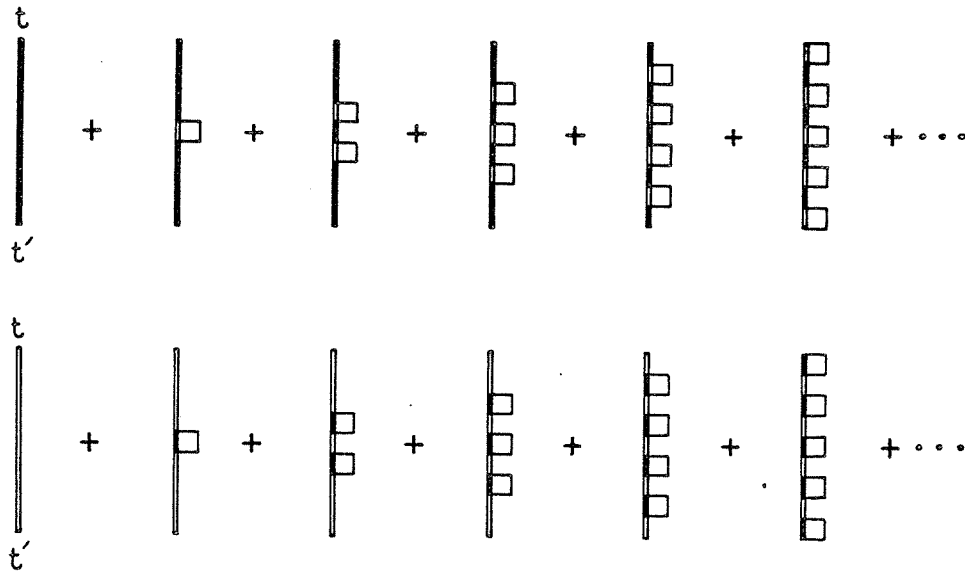


Figure 4

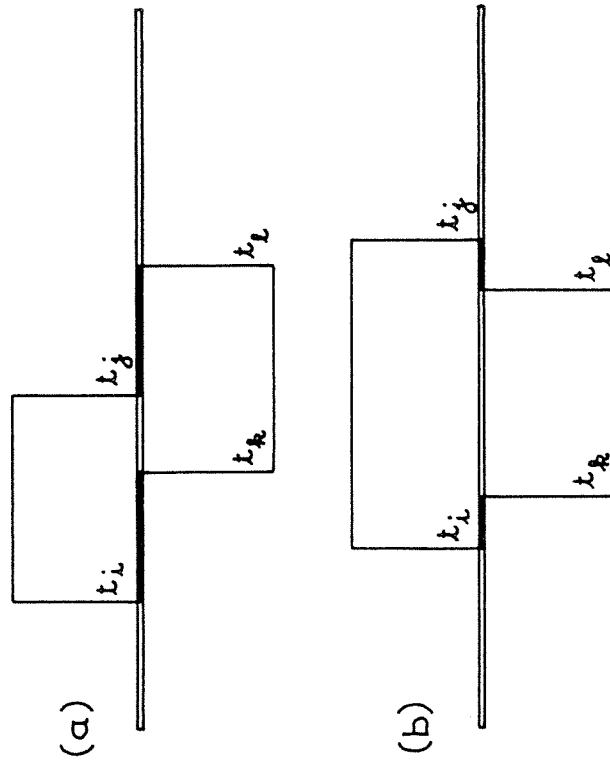


Figure 5

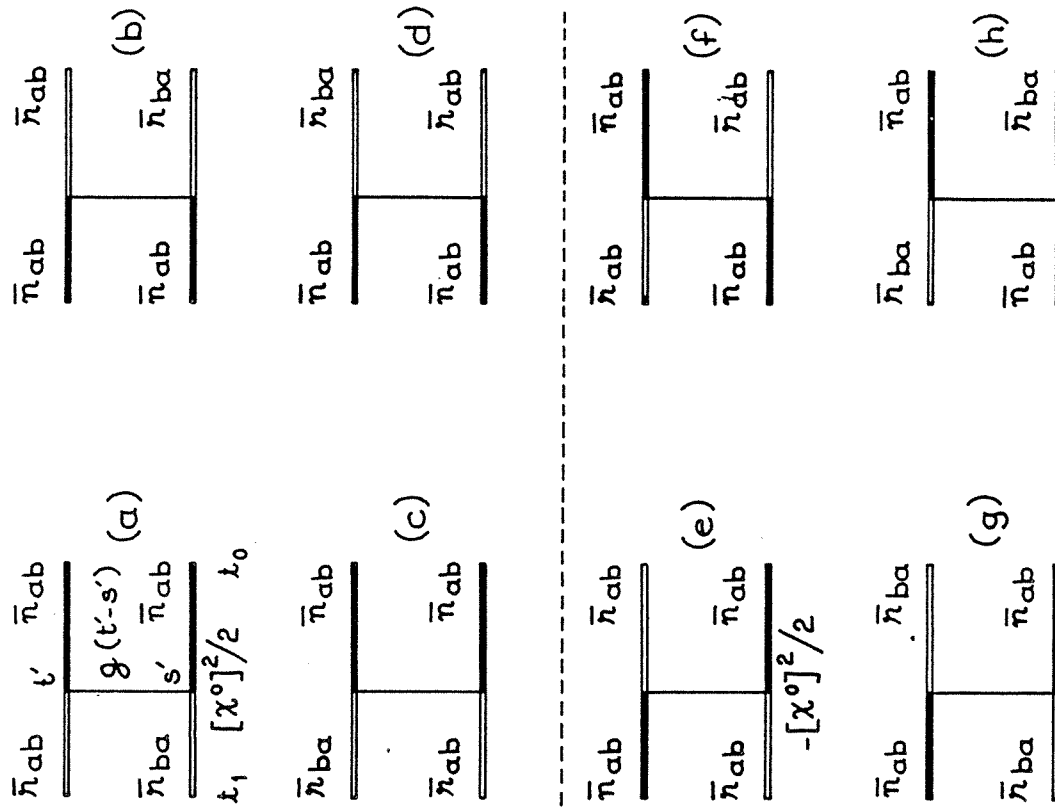


Figure 6

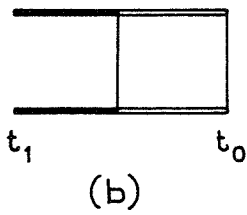
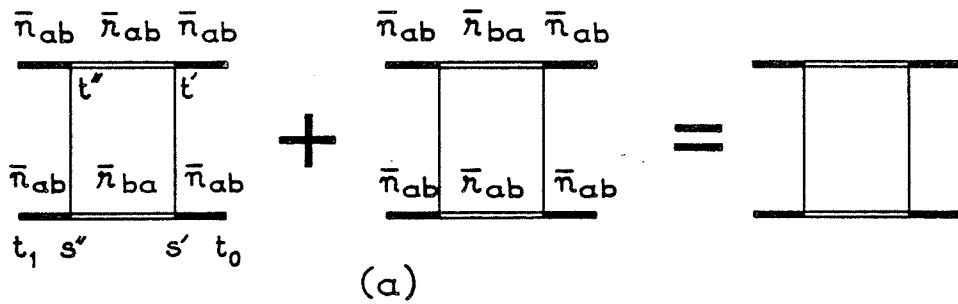


Figure 7

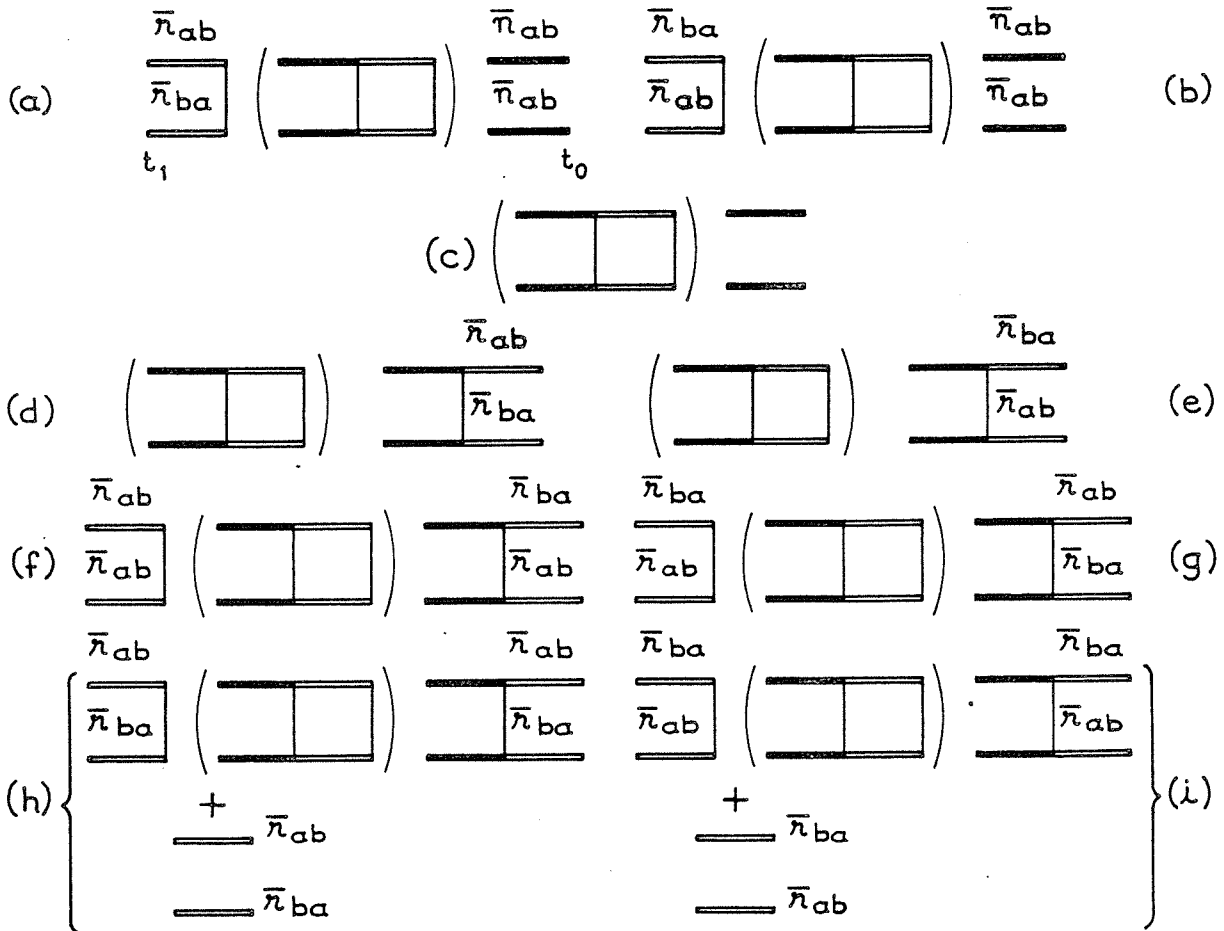


Figure 8



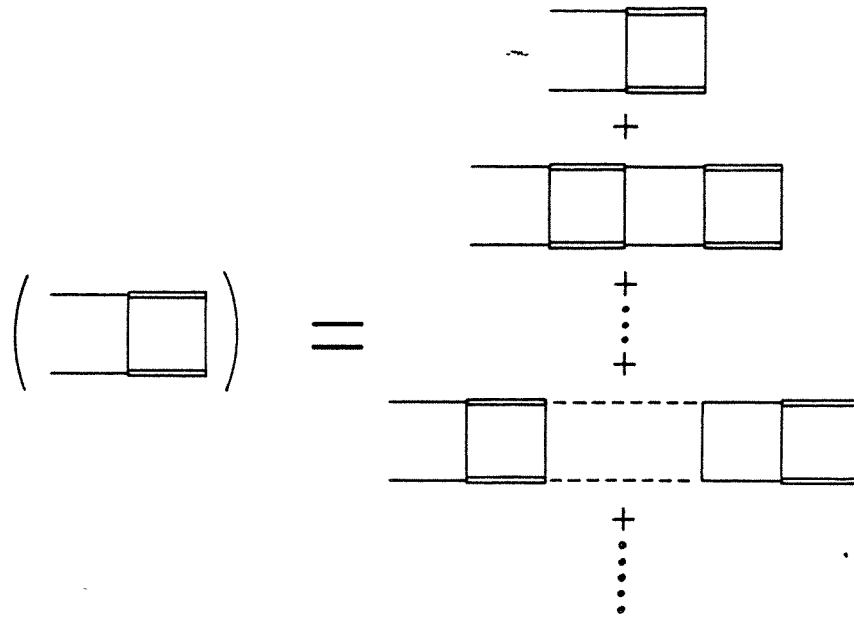


Figure 9

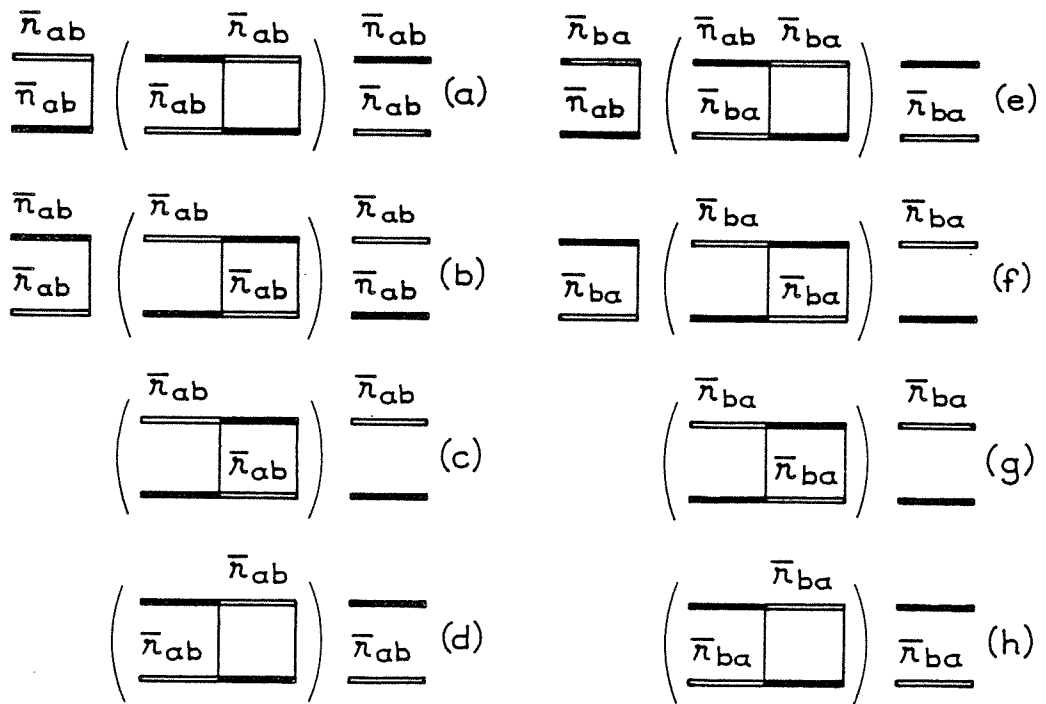


Figure 10

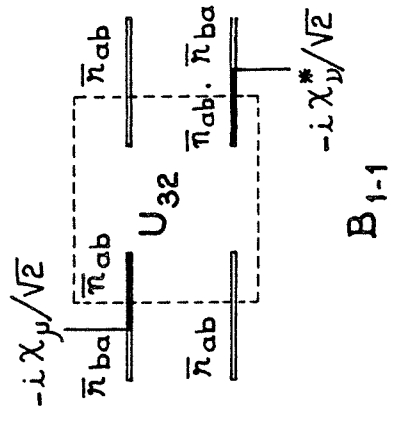
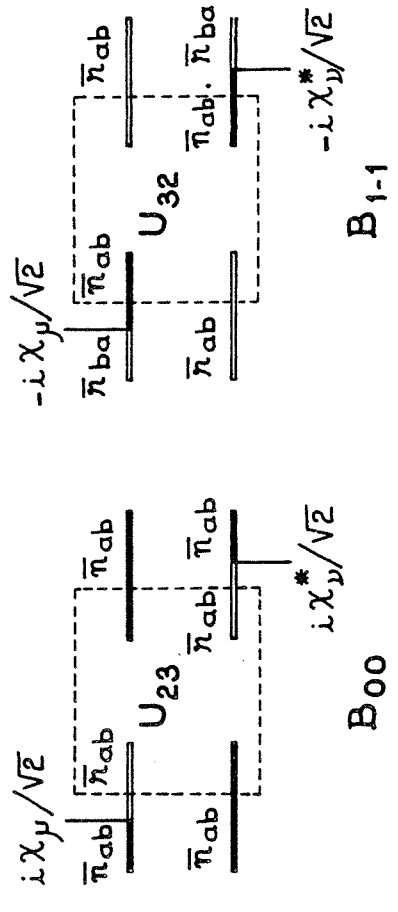
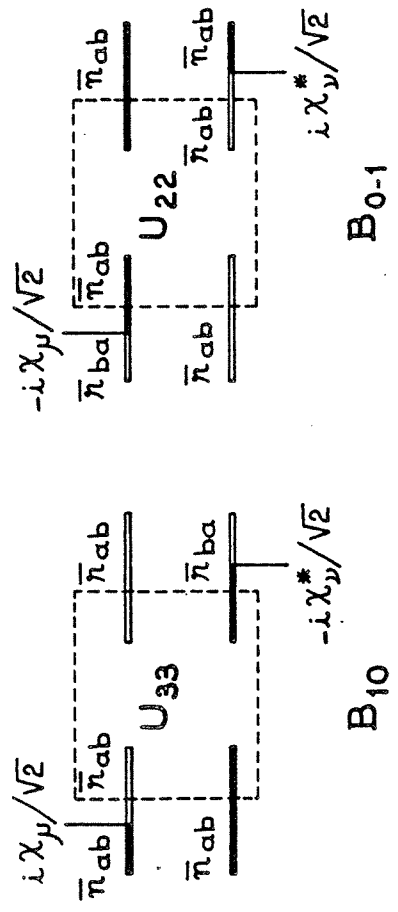
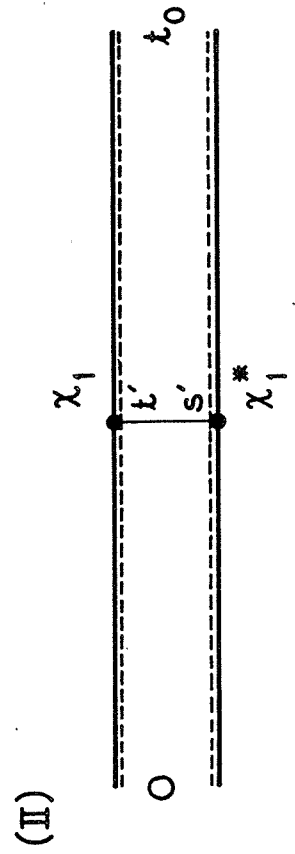
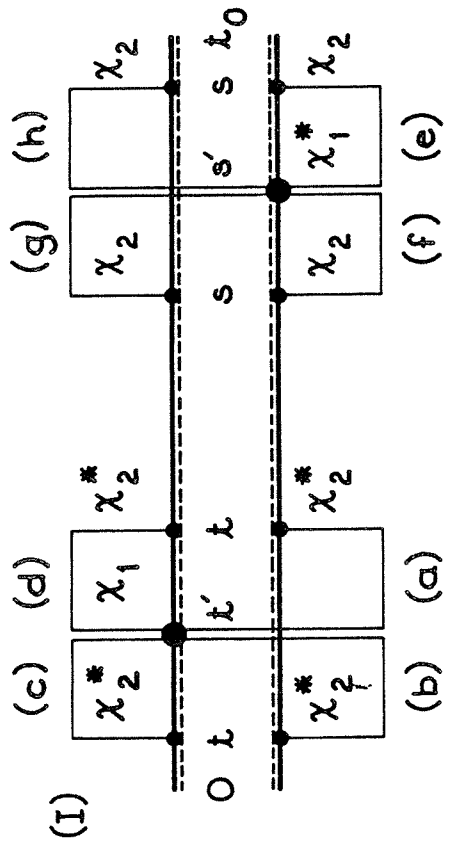


Figure 12

Figure 11

$\frac{\frac{\chi_\mu   t'}{\text{-----}}}{\frac{1}{2} \chi_\mu(t') \chi_\nu^*(t) \mathbf{B}(t-t', \Delta, \Delta') \text{-----}}{\chi_\nu^*   t}$	$\frac{\frac{\chi_\mu^*   t'}{\text{-----}}}{\frac{1}{2} \chi_\mu^*(t') \chi_\nu(t) \mathbf{B}^+(t-t', \Delta', \Delta) \text{-----}}{\chi_\nu   t}$
$\frac{\frac{\chi_\mu   t}{\text{-----}}}{\frac{1}{2} \chi_\nu^*(t') \chi_\mu(t) \mathbf{B}^*(t-t', \Delta', \Delta) \text{-----}}{\chi_\nu^*   t'}$	$\frac{\frac{\chi_\mu^*   t}{\text{-----}}}{\frac{1}{2} \chi_\nu(t') \chi_\mu^*(t) \mathbf{B}^t(t-t', \Delta, \Delta') \text{-----}}{\chi_\nu   t'}$
$\frac{\frac{\chi_\mu   t' \quad \chi_\nu^*   t}{\text{-----}}}{\frac{1}{2} \chi_\mu(t') \chi_\nu^*(t) \mathbf{C}(t-t', \Delta, \Delta') \text{-----}}{\text{-----}}$	$\frac{\text{-----}}{\frac{1}{2} \chi_\mu^*(t') \chi_\nu(t) \mathbf{C}^*(t-t', \Delta', \Delta) \text{-----}}{\chi_\mu^*   t' \quad \chi_\nu   t}$
$\frac{\text{-----}}{\frac{1}{2} \chi_\mu(t') \chi_\nu^*(t) \mathbf{D}(t-t', \Delta, \Delta') \text{-----}}{\chi_\mu   t' \quad \chi_\nu^*   t}$	$\frac{\frac{\chi_\mu^*   t' \quad \chi_\nu   t}{\text{-----}}}{\frac{1}{2} \chi_\mu^*(t') \chi_\nu(t) \mathbf{D}^*(t-t', \Delta', \Delta) \text{-----}}{\text{-----}}$

Figure 13

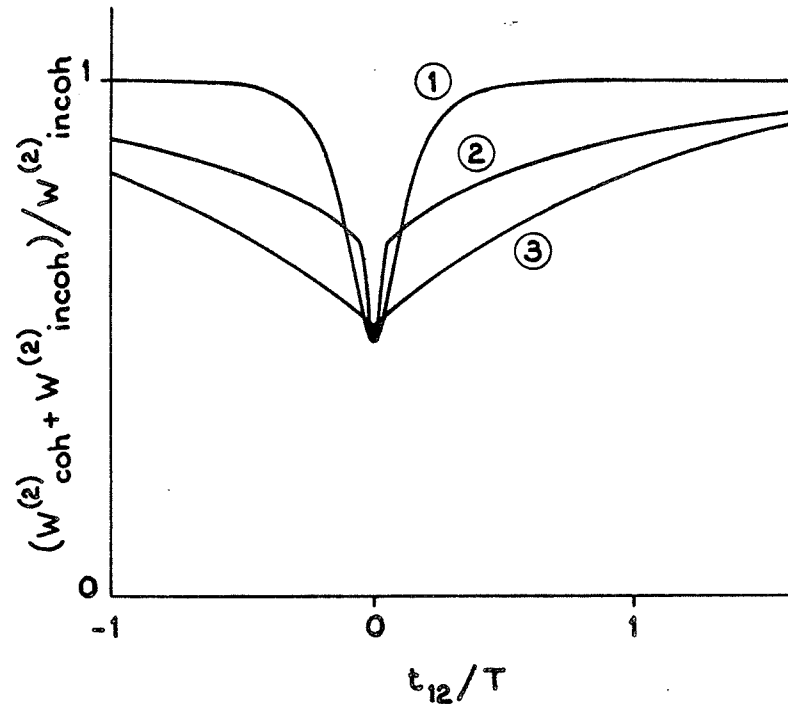


Figure 14

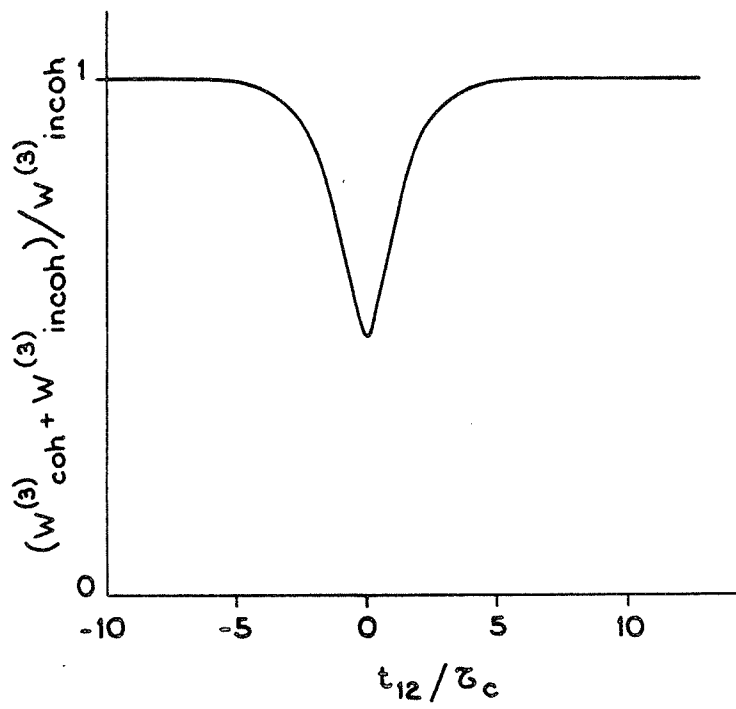


Figure 15

## Article 3



# soumis à Optics Letters

## AN AMPLITUDE CORRELATOR FOR BROADBAND LASER SOURCE CHARACTERIZATION

A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët,  
A. Richard and P. Tchénio

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II  
Université Paris-Sud, Bât. 505  
91405 Orsay Cedex, France

We have developed a simple and versatile instrument for amplitude correlation measurements of broadband laser sources. The spatial fringe pattern produced by two beams issuing from a source is detected by a linear C.C.D. array. The fringe contrast is measured for each laser shot and is recorded versus the time delay between the beams. The apparatus has demonstrated picosecond time resolution together with nanosecond delay range capabilities.

The statistical fluctuations inherent in broadband light sources are of prime importance for nonlinear optical processes. On the one hand, the production of detectable nonlinear optical signals requires high-power pump sources that are often, of necessity, broadband. On the other hand, there are definite advantages in using broadband light to drive nonlinear processes such as time-delayed four wave mixing or photon echoes. When these experiments are performed with correlated broadband pulses, the time resolution is governed by the correlation time  $\tau_c$  of the light and can be much shorter than the pulse duration  $\tau_L$  [1]. This allows one to achieve subpicosecond time resolution with low cost, easy to handle, widely tunable, nanosecond laser sources [2]. For such nonlinear optic experiments, the knowledge of the correlation properties of the light field is needed both to characterize and to control the broadband source and to create a reasonable source model to account for the observed signal behavior. Experimental efforts have been recently devoted to this problem in connection with the measurement of ultra-short light pulses, of multimode lasers [3,4] or of chaotic light sources [5].

The basic source parameters for the above experiments is the amplitude autocorrelation function  $g(\tau)$ ; the correlation time  $\tau_c$  is given by the width of  $g(\tau)$ . Intensity correlations are investigated in a rather simple way using harmonic generation in a nonlinear crystal. The intensity of the frequency-doubled light produced by the interaction of the original beam and of its time-delayed replica is recorded versus the time delay. The method is routinely used to measure the time duration of femtosecond and picosecond light pulses. When incoherent pulsed light is concerned, the method is not sensitive to phase fluctuations [5] and does not provide a reliable determination of  $\tau_c$ . Amplitude correlations are generally determined in the spectral domain since the power spectrum of the light source identifies with the Fourier transform of the field autocorrelation function. The correlation time  $\tau_c$  coincides with the inverse spectral width  $\Omega_L^{-1}$ . Using a Fabry-Perot or a Fizeau interferometer and a C.C.D. detector, mean spectrum and spectral correlations are obtained [3]. However high quality (high cost) optics is needed for the interferometers and the high reflectivity mirrors have to be replaced when the spectral domain is changed. Furthermore it may be



difficult to get the good compromise between the desirable resolution (useful to resolve some mode structure for instance) and the necessary free spectral range. When you have to vary the correlation time (i.e. the spectral width) or the wavelength of the source (i.e. the spectral domain), the method suffers from a lack of versatility. We have developed a new, simple, and versatile instrument for amplitude correlation measurements of broadband laser sources. The apparatus has demonstrated picosecond time resolution together with nanosecond delay range capabilities.

A schematic representation of the amplitude correlator is given in Fig.1. The collimated primary beam from the laser source under investigation is split into two parts. One of the secondary beams is delayed with respect to the other in a variable delay line. A small angular separation ( $\theta \simeq 10^{-2}$  rad.) is introduced between the two beams. They produce two distinct point sources in the focal plane of a lens (focal length :  $f$  ; source separation  $l = f\theta$ ). One observes the Young type interference fringes at a distance  $d \gg l$  from the sources. The actual values of the parameters are :  $f = 100$  mm,  $d \simeq 1200$  mm and  $l \simeq 1.2$  mm ; the spatial period of the rectilinear fringes  $i = \lambda d/l$  is typically 0.7 mm.

The spatial intensity distribution in the fringe pattern is measured by a linear C.C.D. image sensor (model 7831 + model 7931C , Thomson-CSF, France). The fringe contrast is proportional to the value of the Fourier transform of this distribution for the spatial frequency  $1/i$  . For each laser shot, the digitalized signal is transferred to the microcomputer ( Epson PC AX) via a data acquisition card (model SOF 30170, Styrel, France) and the Fourier transform of the spatial distribution is calculated by a specialized processor (PCFFT, Ariel, U.S.A.). The modulus of this Fourier transform at the specific spatial frequency value  $1/i$  is memorized together with the associated delay value. The numerization of the video signal from the image sensor, the temporary storage of the corresponding data in a buffer memory and the transfer of the data to the computer make use of a home-built electronic module similar to that of reference [6]. The timing signals needed to conveniently drive the pulsed Nd-YAG laser (model YG 481C, Quantel, France) and to synchronize the data acquisition, are all derived from the computer clock. Single shot measurements at 15 Hz repetition rate

are achieved.

For an input table with  $N = 2^P = 1024$  elements  $X(n)$ , the output of the FFT processor is a table with  $N$  elements  $\hat{X}(m)$  corresponding to the spatial frequency values  $m/L$  ( $m = 0, \dots, 2^P - 1$ );  $L = Na$ ;  $a = 13 \mu\text{m}$  is the spatial separation between adjacent pixels of the detector. The spatial frequency associated with the fringe pattern typically corresponds to  $m_f = L/i = 20$ . The memorized signal is :

$$Y(\tau) = \left[ \sum_{m_f-2}^{m_f+2} \left| \hat{X}(m) / \hat{X}(0) \right|^2 \right]^{1/2} \quad (1)$$

The summation over adjacent channels ensures that no contribution from the fringes is lost due to the lack of frequency resolution or to accidental fringe spacing variations. The normalization to the mean laser intensity eliminates the influence of shot to shot laser power fluctuations. The fringe spacing has to be experimentally chosen in order not to show any significant contribution to the FFT at  $m_f/L = (1/i)$  in the absence of interference fringes.

The variable delay line was constructed for time-resolved coherent optical spectroscopy experiments and is not basically a part of the correlator. Our optical delay line is composed of three corner cube retroreflectors; two of them are fastened to a mobile chart which is guided by a track made of two polished stainless-steel rods. The line moves to and fro over explored time domains ranging from 0.67 ns up to 13.3 ns. The translation stage position is encoded with a maximum resolution of  $10 \mu\text{m}$  (33 fs) using a carved rule (model LIDA 201, Heidenhain, West Germany).

The microcomputer collects the FT signal and the associated encoded position of the delay line for each laser shot. The correlation curve is obtained after averaging over several ( $\approx 5$ ) to and fro movements. For convenience, the correlation curve is also displayed in real time on the computer screen while the experiment is running. The necessary software has been developed using Pascal language.

The broadband light pulse with central frequency  $\omega_0$  is represented by a classical electric field :

$$E(t) = \mathcal{E}(t) \exp i(\omega_0 t - \vec{k} \cdot \vec{r}) + \text{C.C.} \quad (2)$$

The phase and the amplitude of the optical field  $\mathcal{E}(t)$  are slowly varying functions of time with respect to optical oscillations. We

assume that  $\xi(t)$  can be considered as the product of an envelope function  $\xi^0(t)$ , with characteristic evolution time  $\tau_L$ , by a stationary random function of time  $\varepsilon(t)$ . The stochastic character of the field is contained in the complex quantity  $\varepsilon(t)$  and can be specified by the knowledge of its statistical momentum (correlation functions). We denote the statistical average by :  $\langle \rangle$ . The autocorrelation function and the correlation time are respectively defined as :

$$g(\tau) = \langle \varepsilon(t) \varepsilon^*(t+\tau) \rangle / \langle \varepsilon(t) \varepsilon^*(t) \rangle \quad (3)$$

$$\tau_c = \int_{-\infty}^{\infty} g(\tau) d\tau \quad (4)$$

The spatial variation of the light intensity across the C.C.D. detector is expressed as :

$$I(x) = I_0 \left[ A(x) + |g(\tau)| B(x) \cos \left[ 2\pi(x/i) + \varphi(\tau) \right] \right] \quad (5)$$

$\varphi(\tau)$  is a phase factor which accounts for the variation of the optical path difference of the two beams. The laser intensity  $I_0$  fluctuates from one laser shot to the other. The real quantities  $A(x)$  and  $B(x)$  account for the spatial variations of the laser intensity; these variations are assumed to be very slow with respect to the cosine function. The dominant contributions of the second term of Eq.5 to the Fourier spectrum are thus concentrated in a small domain around  $(1/i)$ . If we assume that this domain is totally covered by the summation in Eq.1, we have thus :

$$Y(\tau) \propto |g(\tau)| \left[ \int_0^L \left[ B(x) \right]^2 dx \right]^{1/2} / \left[ \int_0^L A(x) dx \right] \quad (6)$$

The measured quantity is thus the modulus of the autocorrelation function  $g(\tau)$ . The procedure is not sensitive to  $\varphi(\tau)$  and does not require any interferometric control of the delay variation.

Experimental results are presented in Fig.2-4. The laser source is a home-made Hänsch-type dye laser pumped by a Nd-YAG laser (pulse duration 10ns; repetition rate 15Hz) and followed by an amplifier.

The laser operates at  $\lambda = 689 \text{ nm}$  (LDS dye + ethanol). The bandwidth of the laser can be changed in a simple way by introducing a slit in front of the cavity grating. This variation is illustrated in Fig.2.

With a set of beam splitters and of beam combiners we can produce double correlated pulses with a pulse separation smaller than the individual pulse duration. Examples of the associated three-peak autocorrelation functions are given in Fig.3.

If the laser source could be modeled as a superposition of several cavity modes with fluctuating amplitudes and phases, one should get a periodic autocorrelation function with a period equal to the cavity round trip time  $\tau_R$  [4]. With a single pulse source and an increased delay domain this kind of periodic curve was only observed (Fig.4) for fine adjustment of the laser cavity. Even in this case a narrow structure around  $\tau = 0$  was superimposed to the broad "mode" structure. Most of the time, the output of our broadband source looks very much like a spectrally filtered Amplified Spontaneous Emission (A.S.E.) source rather than like a multimode laser.

The amplitude correlator is routinely used for source control and measurement in our experiments. It appears to be rather insensitive to beam imperfections and only requires some degree of spatial coherence in the beam. The optics used in the apparatus is very simple. The system can be used all through the spectral domain covered by the C.C.D. detector (i.e. 400 nm -1100 nm) without any modification. The delay line have to be modified if one wants to get either a higher time resolution or a larger delay range. With our technique, the attainable time resolution is limited by our (implicit) assumption that the variation of the optical path difference across the useful fringe pattern is less than the coherence length of the source (i.e. the variation of the delay  $\Delta\tau$  is less than  $\tau_c$ ). The fringe contrast is expected not to vary in the detected area. If this is not true, we have to change in Eq.5  $g(\tau)$  into  $g(\tau - x T_{\text{opt.}}/i)$  where  $T_{\text{opt.}} = \lambda/c$  is the optical period. We currently used  $m_f = 20$  fringes and  $\Delta\tau$  amounts to less than 50 fs. Without any change, our system can thus be used to measure correlation times as short as 0.1 ps provided that the optical path variation is conveniently measured at this precision level. As suggested by Fig.4, the method could possibly be useful for the

determination of the A.S.E. contribution to the laser source output.

#### REFERENCES

- [1] N. Morita and T. Yajima ; Phys. Rev. A 30 ,2525 (1984).
  
- [2] S. Asaka , H. Nakatsuka and M. Fujiwara , M. Matsuoka ;  
Phys. Rev. A 29 , 2286 (1984).
  
- [3] L.A. Westling , M.G. Raymer and J.J. Snyder ;  
J. Opt. Soc. Am. B 1 , 150 (1984).
  
- [4] L.A. Westling and M.G. Raymer ; J. Opt. Soc. Am. B 6 , 911  
(1986).
  
- [5] C. Radzewicz , Z.W. Li and M.G. Raymer ;  
Phys. Rev. A 37 , 2039 (1988).
  
- [6] A. Fausse; Thèse de Docteur-Ingénieur, Conservatoire National  
des Arts et Métiers (C.N.A.M.), Paris, 1986 (unpublished).

## FIGURE CAPTIONS

Figure 1. Experimental set-up for observation of amplitude correlations of pulsed broadband sources.

Figure 2. Recorded autocorrelation curves for different values of the spectral width of the broadband source. The experimental values of  $\tau_c$  are respectively 14 ps (upper trace), 28 ps (middle trace) and 40 ps (lower trace).

Figure 3. Recorded autocorrelation curve for a double correlated pulse source. The delay between the two overlapping pulses is  $\tau = 208$  ps. The upper trace and the lower trace correspond to  $\tau_c = 9$  ps and  $\tau_c = 41$  ps respectively.

Figure 4. Recorded autocorrelation curve with an extended delay range ( $\Delta t_{12} = 3.33$  ns) for a fine adjustment of our broadband source. The cavity round trip time is  $\tau_R = 2.07$  ns.

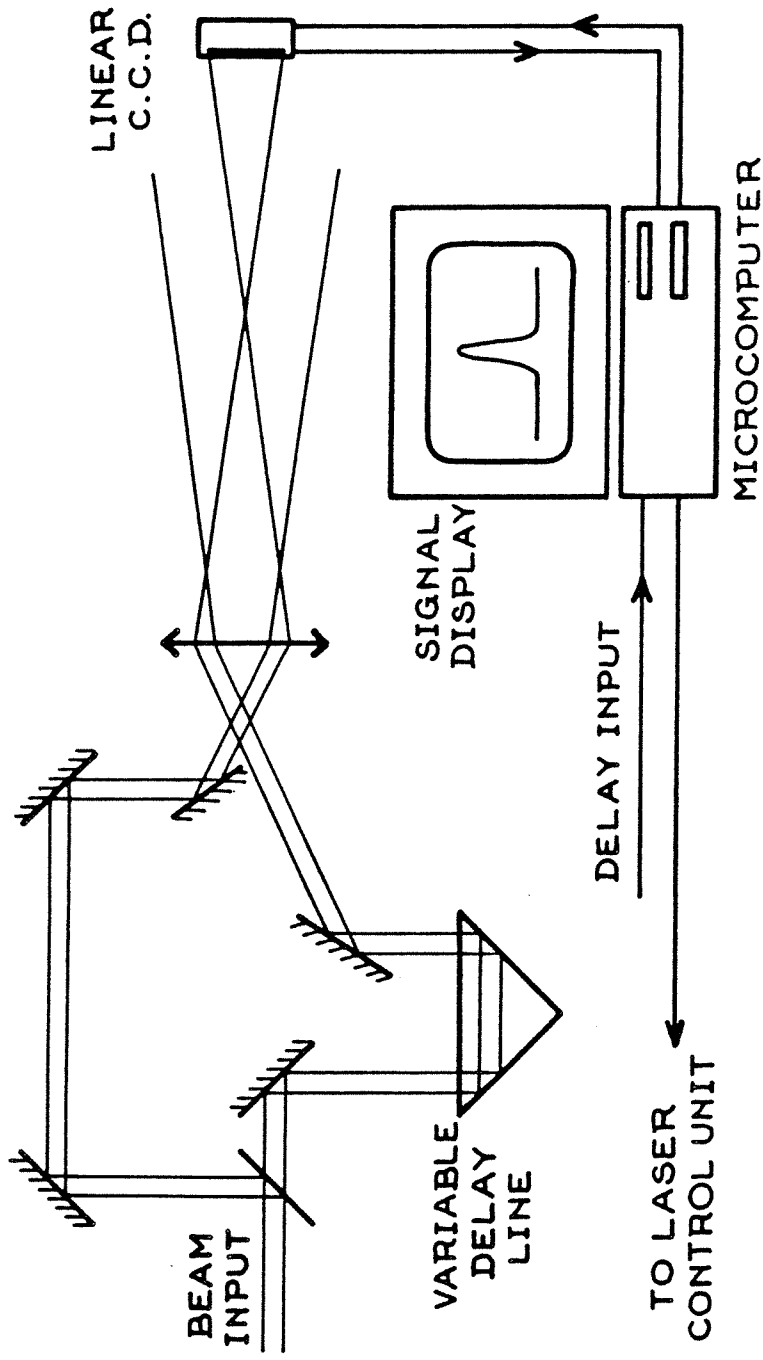


Figure 1

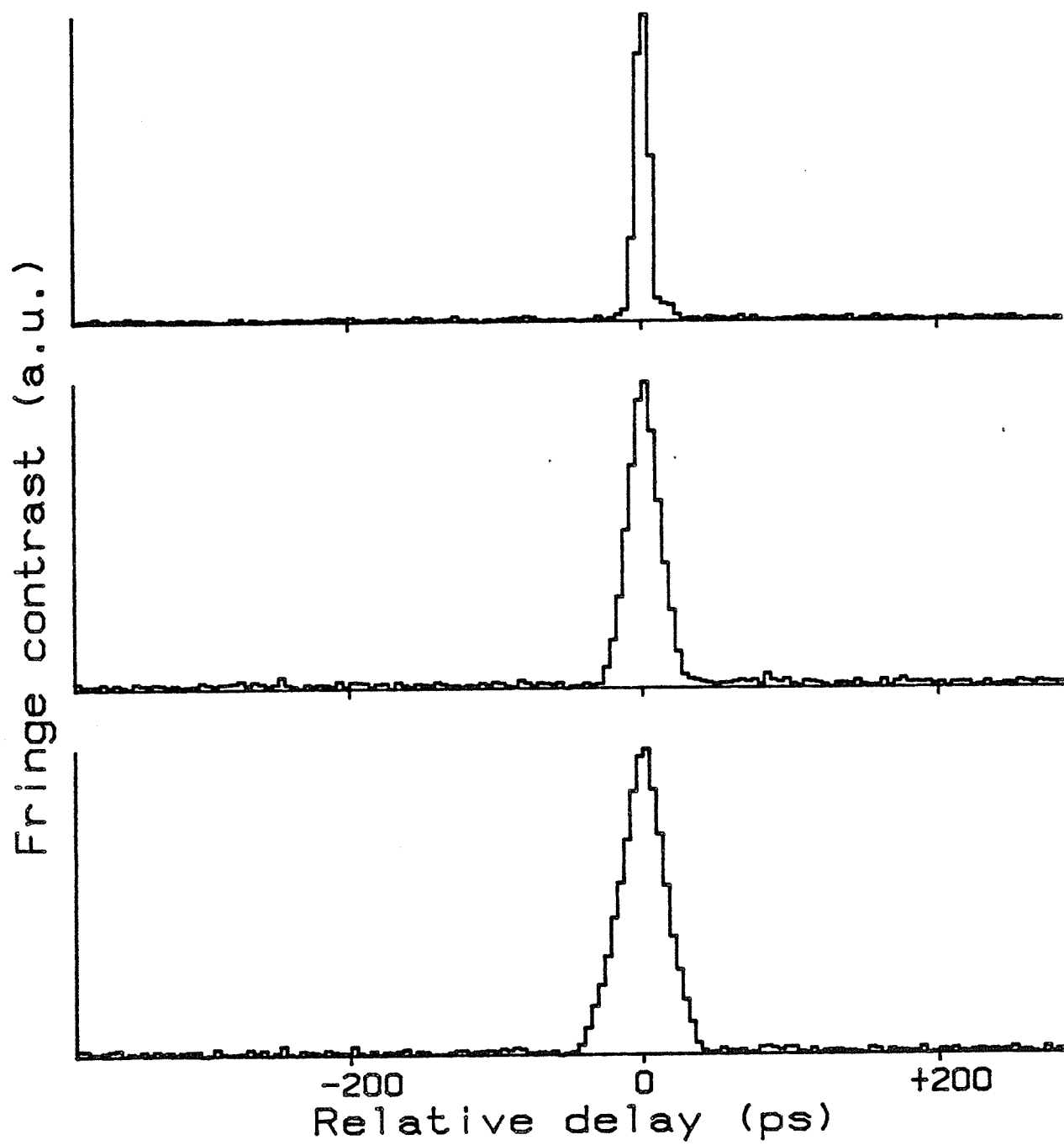


Figure 2



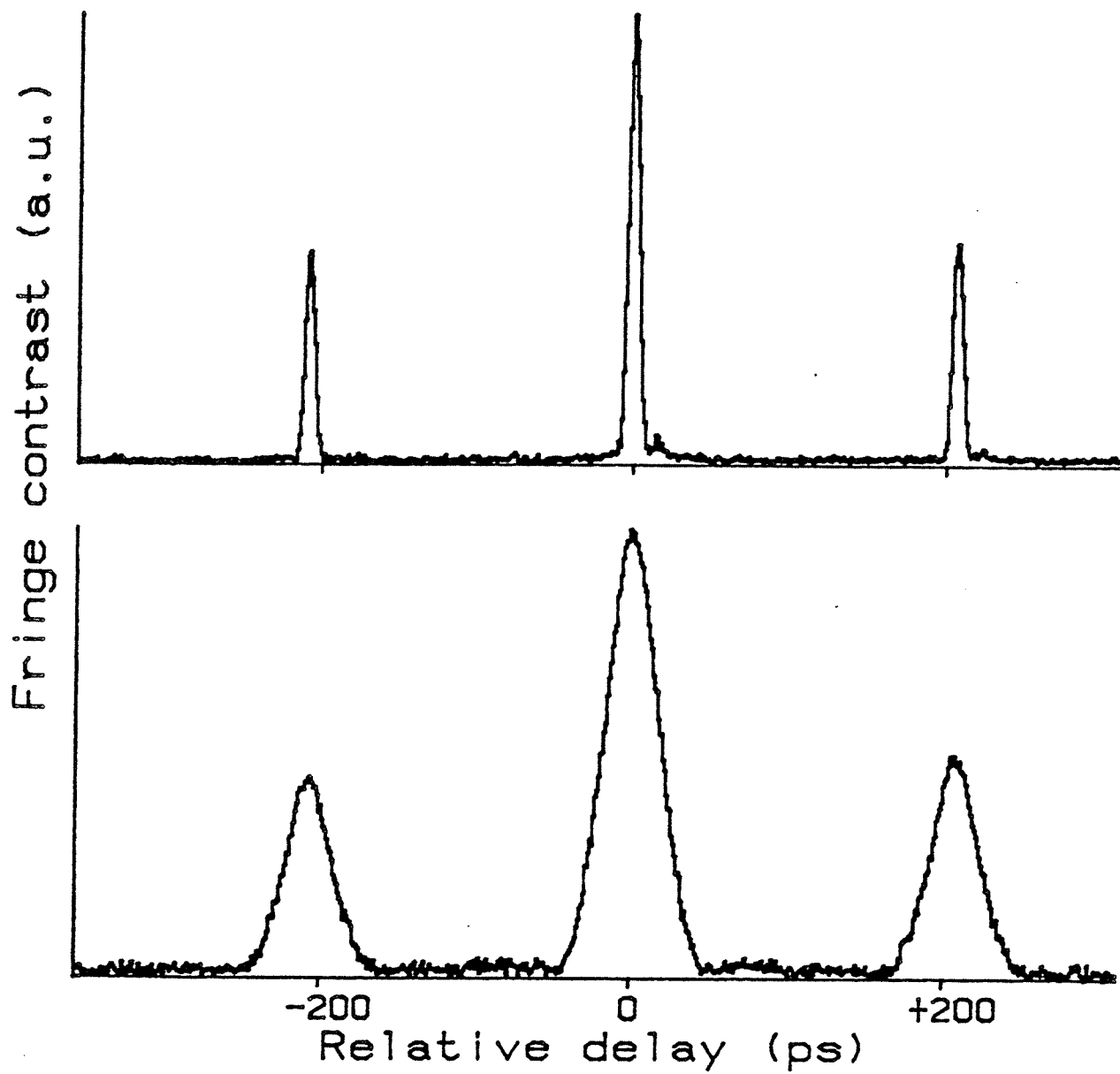


Figure 3

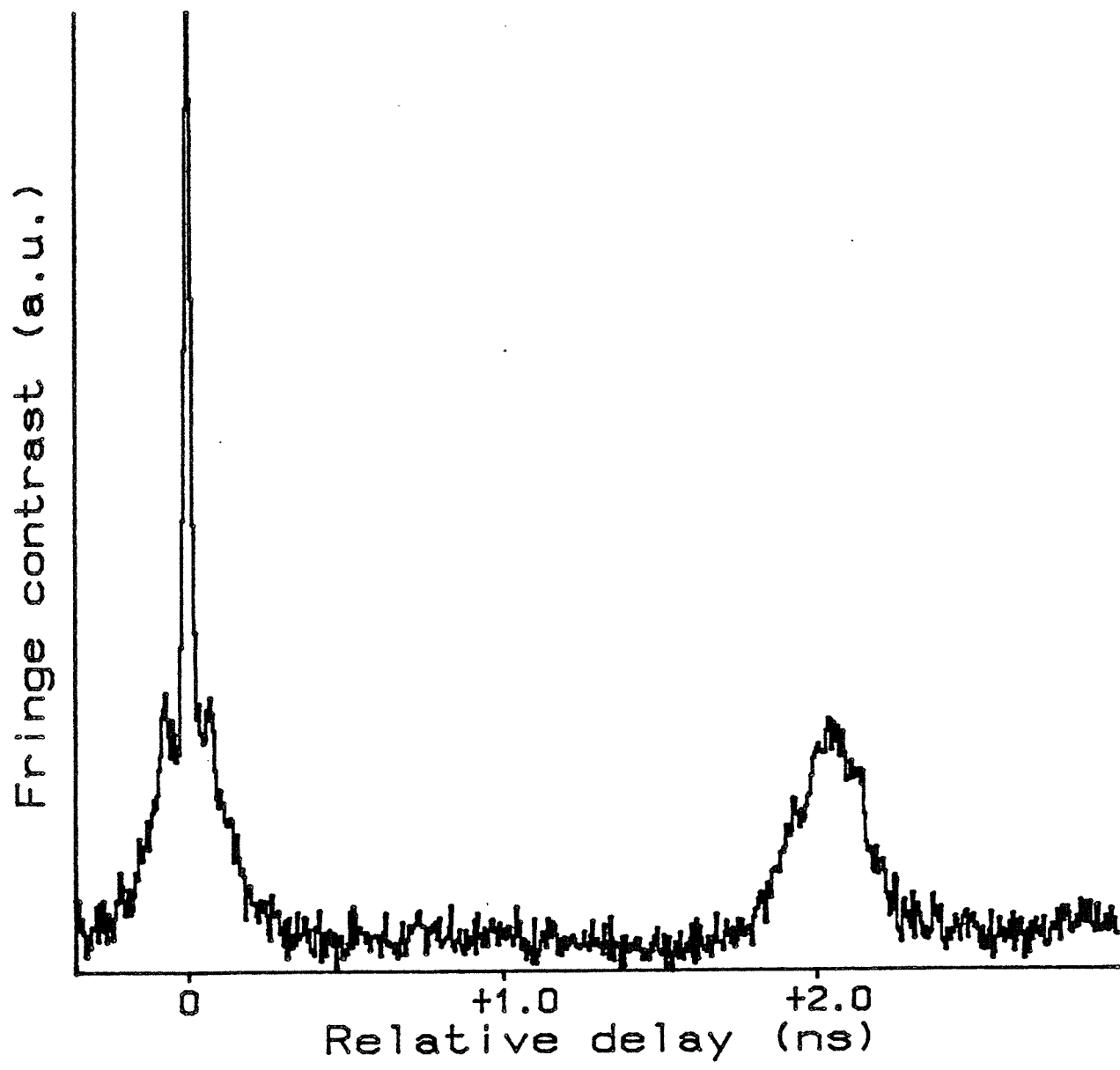


Figure 4

## Article 4



## Inhibition of inhomogeneous dephasing by a strong stochastic optical field

P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, and J.-L. Le Gouët

*Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, Université de Paris-Sud,  
Bâtiment 505, 91405 Orsay Cédex, France*

(Received 13 May 1988)

We examine the buildup of atomic dipoles by a single broadband light pulse and their subsequent rephasing to produce a coherent transient signal. Within the assumption of short-time correlation for the light field, the theoretical model predicts the inhibition of inhomogeneous dephasing by the strong stochastic field. A geometrical picture of the effect is presented that uses a diffusion model of the Bloch vector headings on the Bloch sphere. The model is applied to the specific case of a stimulated photon echo in an angled-beam configuration. The corresponding experiment is performed in calcium vapor, and the expected inhibition effect is observed. The decay of the echo intensity as a function of the delay between the two first weak pulses is found to agree with the theoretical model.

### I. INTRODUCTION

A growing field of investigation has been opened by the promising opportunity of observing ultrafast phenomena when broadband excitation is used to produce coherent transient optical signals. Time resolution is limited by the coherence time of the light pulses  $\tau_c$ , which equals the inverse spectral width of the source  $\omega_L^{-1}$ . This characteristic time may be much shorter than the pulse duration  $\tau_L$  when the source is provided by a nanosecond pulsed dye laser without selective elements. The high resolution which is attainable in the temporal domain suggests that a coherent excitation may be achieved on a spectral width  $\tau_c^{-1}$ , identical to that produced by a Fourier transform limited pulse of duration  $\tau_c$ . These complementary temporal and spectral features have been put into evidence through the observation of fast decay rates in photon-echo experiments,<sup>1-4</sup> fast quantum beats,<sup>5,6</sup> and fast switch over of the echo direction of emission, when an angled beam configuration is used.<sup>6-8</sup>

All the above mentioned experiments were performed under weak-field conditions. Indeed, in the weak-field limit, a perturbative treatment to the lowest order of the excitation field allows the description of the evolution of the process. However, the formation of broadband coherent transients under strong-field conditions deserves to be considered. This problem is of importance as regards the generation of a large class of coherent transients such as photon echoes, since large field strength is often required to get optimum signal intensity. Provided the power effects are disentangled, quantitative information on relaxation processes may be still derived from the signal analysis even under strong-field conditions. Besides, the formation of broadband coherent transients under strong-field conditions offers an opportunity to reconsider the solution of the stochastic Bloch equation. This theoretical problem has been extensively examined in the past to determine level-excitation probabilities<sup>9</sup> and to elucidate the mechanisms of laser-induced resonance fluorescence.<sup>10</sup> However, the atomic quantities which are involved differ somewhat from those which originate the

coherent transient signals.

Coherent transient signals result from the buildup of coherences  $\rho_{ij}$  between the atomic states  $i$  and  $j$ , which are connected by the resonantly excited optical transition. The corresponding oscillating dipoles radiate a transient light flux. Due to the spatial coherence of the excitation, the elementary fields emitted by all the dipoles interfere coherently to produce the signal. The resulting expression of the signal intensity is proportional to

$$\sum_m \sum_n \rho_{ij}(m, t) \rho_{ij}^*(n, t) F_{mn}(t),$$

where the sums run over all the irradiated atoms and where  $F_{mn}$  stands for some velocity- and position-dependent phase factors. The broadband excitation fields are described as stochastic functions of time. The time evolutions of the atomic level populations and coherences are solutions of the optical Bloch equation, which contains random coefficients due to the stochastic character of the driving fields. Meaningful information is derived from the data after statistical averaging over many realizations of the broadband excitation sequence. Hence a mathematical treatment of the problem aims at expressing the statistical expectation values  $\langle \rho_{ij}(m, t) \rho_{ij}^*(n, t) \rangle$ , which are two-atom, single-time correlation functions of the optical coherences. These quantities differ from the single atom, two-time correlation function which is encountered in the theory of laser-induced resonance fluorescence.<sup>10</sup> It also differs from the time-dependent averaged level population which is needed to calculate excitation probabilities.<sup>11</sup>

In this paper, we examine the broadband strong-field formation of coherent transients with the provision that the buildup of the coherence  $\rho_{ij}$  involves a single independent strong field. A complete theoretical and experimental study is performed in the specific configuration of stimulated photon echo.

A stimulated photon echo is produced by resonant excitation of a two-level system vapor by a sequence of three broadband pulses of wave vectors  $\mathbf{k}_1$ ,  $\mathbf{k}_2$ , and  $\mathbf{k}_3$

( $|\mathbf{k}_1| = |\mathbf{k}_2| = |\mathbf{k}_3| = k$ ) (Fig. 1). The system is inhomogeneously broadened by the Doppler effect and the Doppler width  $\Delta_D$  satisfies the conditions  $\tau_c \ll \Delta_D^{-1} \ll \tau_L$ . The first two pulses are mutually coherent. They issue from the same source and the second one is  $t_{12}$  delayed with respect to the first one. A small angle exists between the wave vectors. The third pulse is uncorrelated with the two other ones and probes the system at  $t_3 > t_2$ . It copropagates with the pulse 1. The first two pulses engrave a thick grating of Bragg vector  $\mathbf{K} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  in the population difference. The echo signal results from the scattering of the probe field by the grating in the directions  $\mathbf{k}_3 \pm \mathbf{K}$ . The direction of emission switches over from  $\mathbf{k}_e = \mathbf{k}_3 + \mathbf{K} = \mathbf{k}_2$  to  $\mathbf{k}'_e = \mathbf{k}_3 - \mathbf{K} = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$  when  $t_{12}$  is varied across zero [Fig. 1(a)]. The specific broadband features are analyzed through the variations of the echo intensity in the direction  $\mathbf{k}_2$  when  $t_{12}$  is varied across zero. The signal is the sum of the following two contributions.

(i) A "coherent" signal which evolves on a  $t_{12}$  domain around zero, shorter than the pulse duration (of the order of  $\Delta_D^{-1}$  in the case of weak fields), when  $t_{12}$  varies across zero. The observation of such a fast decay is the manifes-

tation of the broadband coherent excitation achieved by the correlated first two pulses over the entire velocity distribution.

(ii) An "incoherent" signal which varies in the time scale of  $\tau_L$  and which exists even if the two first pulses are uncorrelated.

The process can be depicted by a temporal picture which is available when the first two pulses are weak. The light pulse is parted into contiguous uncorrelated elementary pulses of duration  $\tau_c$ . To each elementary slice of the first pulse corresponds a time-delayed replica in the second correlated pulse. During the time interval  $t_{12}$  which separates these twin slices, the atomic system undergoes a field-free evolution governed by the Doppler effect. The "coherent" signal is the sum of the elementary contributions of the  $\tau_L/\tau_c$  couples of twin slices. The "incoherent" signal corresponds to the coupling of an elementary slice of the first pulse with any other in the second pulse.

Two distinct types of power studies can be addressed through the excitation scheme of a stimulated photon echo in the following.

(i) One of the first two pulses (or even both of them) is strong. The third is weak. When the delay  $t_{12}$  between the pulses is shorter than the pulse duration, the interaction between the atoms and the field occurs all during the grating formation. This is the situation which has been experimentally examined in Ref. 8. The statistical effects of the strong field may be phenomenologically taken into account by a diffusion model for the Bloch vector headings on the Bloch sphere. The mathematical description of this process stumbles over the existence of long-time correlations between the first two pulses. The fields associated with the two pulses need to be considered as a whole. The autocorrelation function of the resulting total field exhibits two satellite peaks distant of  $t_{12}$  from the usual central peak of width  $\tau_c$ .<sup>8</sup> A theoretical approach of this problem is proposed in a forthcoming paper, under restrictive assumption that one of the two correlated fields is weak.

(ii) The first two pulses are weak. The third one is strong. Now, no complex long-time correlation problem needs to be considered. The theoretical description of excitation by a single broadband strong field is achieved with standard short-time correlation techniques. This is the specific situation that the present paper examines.

In Sec. II analytical expressions of the two-atom single-time correlation functions are derived, which are available for a general description of broadband coherent transients, involving a single independent strong field. The model calculation follows the approach of Brissaud and Frisch.<sup>12</sup> Depending on the field strength  $\chi^0$  different regimes of evolution are attainable. More precisely, they are discussed in terms of the parameter  $T = 1/[\chi^0]^2 \tau_c$ , which takes into account the intricate roles of the coherence time and of the field strength. Such a stochastic strong field appears to inhibit the dephasing of the coherences, with increasing efficiency as a function of the field strength. A geometrical picture of this phenomenon is given through a diffusion model of the Bloch vectors.

In Sec. III the model is applied to the case of a stimu-

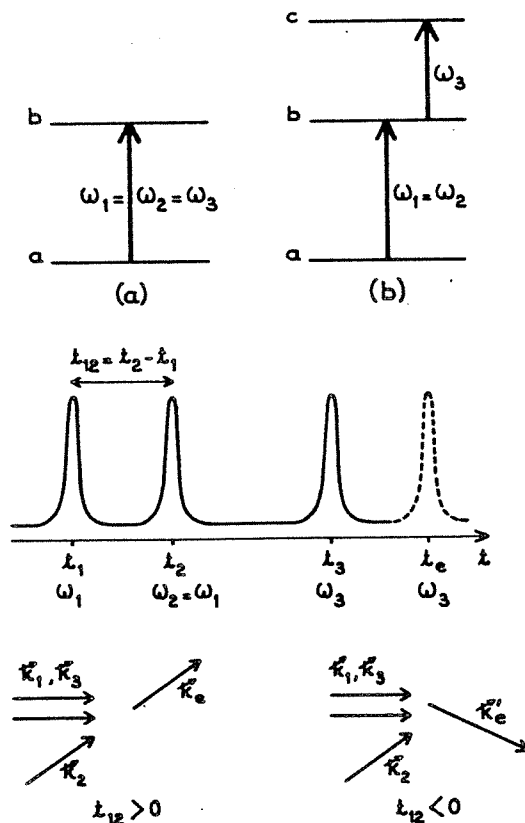


FIG. 1. Stimulated photon-echo configuration. Top: Level scheme. (a) Two-level system, (b) three-level system. Middle: The excitation pulse sequence.  $t_e$  is the time emission of the echo. Case (a),  $t_e = t_3 + t_{12}$ ; case (b),  $t_e = t_3 + (\omega_1/\omega_3)t_{12}$ . Bottom: Echo direction switching in an angled-beam configuration.  $\mathbf{k}_e = \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  and  $\mathbf{k}'_e = \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ .

lated photon scheme for which the initial state of the problem is depicted by the second-order moment of the velocity modulated population difference. Section IV concludes this theoretical development with a comparison on the physical meanings and potentialities of optical dephasing inhibition produced by a broadband strong field and by a monochromatic strong field. Section V is devoted to the experimental results. A stimulated photon echo is produced in a calcium vapor by an angled-beam pulse sequence. A three-level system is considered.

## II. THEORETICAL MODEL

### A. Model frame

We consider an ensemble of two-level atomic systems  $a$  and  $b$  inhomogeneously broadened by the Doppler effect, resonantly excited by a broadband light pulse. The pulse is represented by a classical electric field

$$E(r, t) = \xi(t) \cos[\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \phi(t)], \quad (1)$$

where  $\xi(t)$  and  $\phi(t)$  are slowly varying functions of time with respect to optical oscillations. The stochastic character of the field, which is related to the use of a broadband excitation, is entirely contained in the random functions  $\xi(t)$  and  $\phi(t)$  through the Rabi frequency  $\chi(t)$ ,

$$\chi(t) = (1/\hbar) \mu_{ab} \xi(t) e^{i\phi(t)}, \quad (2)$$

where  $\mu_{ab}$  is the dipolar moment of the transition  $a-b$ . As in previous works,<sup>7,8</sup>  $\chi(t)$  may be expressed as the product  $\chi(t) = \chi^0(t) \epsilon(t)$  of a slowly varying envelope  $\chi^0(t)$  and of a stationary random function  $\epsilon(t)$ . This latter quantity is assumed to verify the following equations:

$$\begin{aligned} \langle \epsilon(t) \rangle &= 0, \\ \langle \epsilon(t) \epsilon^*(t - \tau) \rangle &= g(\tau), \\ \langle \epsilon(t) \epsilon(t - \tau) \rangle &= 0, \\ \tau_c &= \int_0^\infty g(\tau) d\tau, \quad g(0) = 1. \end{aligned} \quad (3)$$

The characteristic evolution time  $\tau_c$  is the width of the autocorrelation function of the field. The variations of  $\chi^0(t)$  reproduce the time envelope of the laser pulse of width  $\tau_L$ . The time scale which governs the behavior of the physical system reads

$$\tau_c = \omega_L^{-1} \ll \Delta_D^{-1} \ll \tau_L,$$

where  $\Delta_D$  is the Doppler width. All the homogeneous relaxation processes are neglected, i.e., the inverse relaxation rates  $\gamma_{ab}^{-1}$ ,  $\gamma_a^{-1}$ , and  $\gamma_b^{-1}$  of the coherences and populations are much larger than any characteristic time of the problem,

$$\gamma_a^{-1}, \gamma_b^{-1}, \gamma_{ab}^{-1} \gg \tau_L.$$

The atomic-system behavior is derived from the evolution of the density-matrix elements which obey a set of linear stochastic differential equations. It can be expressed in the form

$$\dot{\mathbf{X}}(t) = \mathbf{M}(t) \mathbf{X}(t). \quad (4)$$

The components of the  $\mathbf{X}(t)$  vector depend upon the atomic coherences and upon populations through the expressions

$$\mathbf{X}(t) = \begin{bmatrix} r_{ab} = \sqrt{2} \rho_{ab} e^{-i(\omega t - kx)} \\ n_{ab} = (\rho_{bb} - \rho_{aa}) \\ r_{ba} = \sqrt{2} \rho_{ba} e^{+i(\omega t - kx)} \end{bmatrix}; \quad (5)$$

within the rotating-wave approximation  $\mathbf{M}(t)$  reads

$$\mathbf{M}(t) = \mathbf{M}_0 + \mathbf{M}_1(t),$$

where

$$\mathbf{M}_0 = \begin{bmatrix} i\Delta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -i\Delta \end{bmatrix} \quad (6)$$

$$\mathbf{M}_1(t) = \begin{bmatrix} 0 & \frac{i\chi(t)}{\sqrt{2}} & 0 \\ \frac{i\chi^*(t)}{\sqrt{2}} & 0 & \frac{-i\chi(t)}{\sqrt{2}} \\ 0 & \frac{-i\chi^*(t)}{\sqrt{2}} & 0 \end{bmatrix}.$$

$\Delta$  is the Doppler shift relative to a given velocity class of atoms

$$\Delta = \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}.$$

As mentioned in Sec. I, the formulation in a closed form of any coherent transient optical signal implies the preliminary calculation of the second-order moment of the coherences for any two velocity classes of atoms at a given time  $t$ , that is, of the quantities  $\frac{1}{2} \langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle$ , which are *single-time* but *two-atom* correlation functions. Following the analytical method suggested by Brissaud and Frisch,<sup>12</sup> the statistical values  $\langle X_i(\Delta, t) X_j(\Delta', t) \rangle$  are derived from the statement of the evolution equation of  $\langle \mathbf{X}(t) \otimes \mathbf{X}(t) \rangle$ . The term  $X_i(\Delta, t)$  denotes the  $i$ th component of the vector  $\mathbf{X}(\Delta, t)$ .

### B. Formal expression of single-time two-atom correlation functions of coherences and populations

The tensorial product  $\mathbf{X}(t) \otimes \mathbf{X}(t)$  obeys a linear stochastic differential equation which reads

$$\frac{d[\mathbf{X}(t) \otimes \mathbf{X}(t)]}{dt} = \tilde{\mathbf{M}}(t) [\mathbf{X}(t) \otimes \mathbf{X}(t)], \quad (7)$$

where  $\tilde{\mathbf{M}}(t)$  is a matrix with random coefficients

$$\tilde{\mathbf{M}}(t) = \tilde{\mathbf{M}}_0 + \tilde{\mathbf{M}}_1(t),$$

where

$$\tilde{\mathbf{M}}_i(t) = \mathbf{M}_i(t) \otimes \mathbf{I} + \mathbf{I} \otimes \mathbf{M}_i(t), \quad (8)$$

where  $\mathbf{I}$  is the identity matrix. Hence the calculation of the second-order moments  $\langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle$  is reduced to the calculation of the first-order moments of the vector  $\mathbf{X}(\Delta, t) \otimes \mathbf{X}(\Delta', t)$ .

Provided that the field strength satisfies the short-time

correlation condition  $\chi^0 \tau_c < 1$ ,<sup>13</sup> the evolution of  $\langle \mathbf{X}(\Delta, t) \otimes \mathbf{X}(\Delta', t) \rangle$  is governed by the Bourret equation, which states<sup>12</sup>

$$\frac{d \langle \mathbf{X}'(\Delta, t) \otimes \mathbf{X}'(\Delta', t) \rangle}{dt} = \int_0^t dt' \langle \tilde{\mathbf{M}}_1'(t) \tilde{\mathbf{M}}_1'(t') \rangle \langle \mathbf{X}'(\Delta, t) \otimes \mathbf{X}'(\Delta', t) \rangle, \quad (9)$$

where  $\tilde{\mathbf{M}}_1'(t)$  is deduced from the expression of

$$\mathbf{M}_1'(t) = e^{-M_0 t} \mathbf{M}_1(t) e^{M_0 t}$$

by Eq. (8) and where  $\mathbf{X}'(\Delta, t) = e^{-M_0 t} \mathbf{X}(\Delta, t)$ . This approach involves a decorrelation procedure, and implies the absence of long-range time correlations in the excitation field. This condition is fulfilled in the present case where the autocorrelation function of the excitation field exhibits a single peak centered at  $\tau=0$ . Despite the restrictive condition  $\chi^0 \tau_c < 1$ , the Bourret equation allows us to extend the analytical treatment of the problem to strong-field situations for which the perturbative treatment of the stochastic Bloch equations fails, that is, for which  $[\chi^0]^2 \tau_c \tau_L > 1$ .

Friedberg has recently performed a complete calculation of the  $9 \times 9$  matrix

$$\int_0^t dt' \langle \tilde{\mathbf{M}}_1'(t) \tilde{\mathbf{M}}_1'(t') \rangle.$$

He has demonstrated that this matrix can be split up into two block matrices of  $3 \times 3$  and  $6 \times 6$ , thanks to an appropriate permutation of the  $\langle \mathbf{X}(t) \otimes \mathbf{X}(t) \rangle$  vector components.<sup>14</sup> Moreover, the three-dimensional subsystem connects the evolution of  $\langle \rho_{ab}(\Delta, t) \rho_{ba}(\Delta', t) \rangle$ ,  $\langle n_{ab}(\Delta, t) n_{ab}(\Delta', t) \rangle$ , and  $\langle \rho_{ba}(\Delta, t) \rho_{ab}(\Delta', t) \rangle$ . Hence the complexity of the calculation of optical coherent transient signals which relies on the determination of  $\langle \rho_{ab}(\Delta, t) \rho_{ba}(\Delta', t) \rangle$  is largely reduced. One obtains the following linear stochastic differential system:

$$\frac{d \langle \mathbf{Y}(t) \rangle}{dt} = \mathbf{A}(t) \langle \mathbf{Y}(t) \rangle,$$

where

$$\langle \mathbf{Y}(t) \rangle = \begin{pmatrix} \langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle \\ \langle n_{ab}(\Delta, t) n_{ab}(\Delta', t) \rangle \\ \langle r_{ba}(\Delta, t) r_{ab}(\Delta', t) \rangle \end{pmatrix} \quad (10)$$

and

$$\mathbf{A}(t) = - \begin{pmatrix} \frac{1}{T} - i(\Delta - \Delta') & -\frac{1}{T} & 0 \\ -\frac{1}{T} & \frac{2}{T} & -\frac{1}{T} \\ 0 & -\frac{1}{T} & \frac{1}{T} + i(\Delta - \Delta') \end{pmatrix}, \quad (11)$$

where  $T = 1 / \{ [\chi^0(t)]^2 \tau_c \}$ . The imaginary factor  $i(\Delta - \Delta')$  stands for the field-free Doppler dephasing of the dipoles. The evolution equation  $\dot{\mathbf{Y}}(t) = \mathbf{A}(t) \mathbf{Y}(t)$  can be solved using the Laplace-transform method. In order to derive analytical solutions, we proceed to this calculation

under the assumption that the strong pulse is rectangular shaped.

### C. Analytical expression of the second-order moment of the coherences generated by a rectangular-shaped pulse

In the model frame, we proceed to the calculation of the first component of the vector  $\mathbf{Y}(t)$ , i.e.,  $Y_1(\Delta, \Delta', t) = \langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle$  which enters the signal formulation. The two other components are denoted  $Y_2(\Delta, \Delta', t)$  and  $Y_3(\Delta, \Delta', t)$ , respectively. The Laplace transform of  $Y_1(\Delta, \Delta', t)$  reads

$$\hat{Y}_1(\Delta, \Delta', \lambda) = \int_0^\infty Y_1(\Delta, \Delta', t) e^{-\lambda t} dt.$$

The coherences excited by the broadband field are built on the initial populations, that is,

$$Y_1(\Delta, \Delta', t=0) = Y_3(\Delta, \Delta', t=0) = 0.$$

The time  $t=0$  stands for the beginning of the pulse. Then it follows that

$$\hat{Y}_1(\Delta, \Delta', \lambda) = (1/T) \{ [\lambda - i(\Delta - \Delta') + 1/T] / P(\lambda) \} \times Y_2(\Delta, \Delta', t=0). \quad (12)$$

$P(\lambda)$  is the characteristic polynomial of the eigenvalues of the  $\mathbf{A}(t)$  matrix,

$$P(\lambda) = \lambda^3 + 4\lambda^2/T^2 + (3/T^2 + \alpha^2/T^2)\lambda + 2\alpha^2/T^3, \quad (13)$$

where  $\alpha = (\Delta - \Delta')T$ . The calculation is straightforward under the assumption that the pulse duration is finite and it leads to the result

$$Y_1(\Delta, \Delta', t) = P_1(\Delta - \Delta', t) Y_2(\Delta, \Delta', t=0), \quad (14)$$

where

$$P_1(\Delta - \Delta', t) = \frac{z_1 - i(\Delta - \Delta')T + 1}{(z_1 - z_2)(z_1 - z_3)} e^{+(z_1/T)t} + \text{c.p.} \quad (15)$$

where c.p. represents a cyclic permutation of  $z_1, z_2$ , and  $z_3$ . The quantities  $z_1, z_2$ , and  $z_3$  are deduced from the eigenvalues of the  $\mathbf{A}(t)$  matrix by the relation  $z_i = \lambda_i T$ . Equation (14) expresses that the spectral dependence of the second-order moment of coherences induced by a single broadband excitation only relies upon the initial velocity distribution of the populations through the factor  $Y_2(\Delta, \Delta', t=0)$ . The temporal evolution is entirely described by the function  $P_1(\Delta - \Delta', t)$ .

### D. Temporal behavior of the second-order moment of the coherences

The temporal evolution is determined by the set of eigenvalues  $\lambda_1 = z_1/T$ ,  $\lambda_2 = z_2/T$ , and  $\lambda_3 = z_3/T$ , which are deduced from the solutions  $z_1, z_2$ , and  $z_3$  of the equation

$$P(z/T) = 0. \quad (16)$$

The expression of the characteristic parameter

$$\alpha = (\Delta - \Delta') \frac{1}{[\chi^0]^2 \tau_c}$$



suggests that the system evolution results from both the competitive effects of the driving field and of the Doppler broadening. Two boundary field regimes must be distinguished according to the values of  $\alpha$ .

### 1. Weak-field regime: $T \gg \tau_L$

The usual condition retained to describe the weak-field limit  $T \gg \tau_L$  is consistent with the condition  $\alpha \gg 1$  for any two different velocity classes  $\Delta$  and  $\Delta'$ , since  $\tau_L^{-1}$  is the minimum resolvable frequency shift between velocity classes. To the lowest order in  $\alpha^{-1}$ , the solutions read

$$\begin{aligned} \lambda_{1,2} &= -\frac{1}{T} \pm i(\Delta - \Delta'), \\ \lambda_3 &\equiv -\frac{2}{T}. \end{aligned} \quad (17)$$

It corresponds to damped oscillations. Moreover, the damping constant is independent of the velocity distribution. The condition  $\tau_L/T \ll 1$  ensures that the relaxation induced by the field action can be neglected over the whole pulse duration and that the dominant evolution is due to the field-free Doppler dephasing.

### 2. Strong-field regime: $\Delta_D T \ll 1$

The condition  $\Delta_D T \ll 1$  is equivalent to  $\alpha \ll 1$ . To the lowest order, the three solutions of the secular equation read

$$\begin{aligned} \lambda_1 &= -\frac{3}{T} + (\Delta - \Delta')^2 T / 6, \\ \lambda_2 &= -\frac{1}{T} + (\Delta - \Delta')^2 T / 2, \\ \lambda_3 &= -\frac{2}{3}(\Delta - \Delta')^2 T, \end{aligned} \quad (18)$$

and the regime is aperiodic. The absence of imaginary factors in the eigenvalues shows that the action of a single strong stochastic field during the pulse time interval is to inhibit the Doppler dephasing of the dipoles. The second-order moment is the sum of three terms [Eqs. (14) and (15)]. The first two terms include relaxation factors having a lifetime of order  $T$ . The corresponding components vanish on a time scale of  $T = 1/([\chi^0]^2 \tau_c)$ , that is, at the very beginning of the excitation pulse for a strong field. The third term decays much slower and governs the attainable relaxation rate of the signal

$$\begin{aligned} \langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle &= \frac{1}{3} \langle n_{ab}(\Delta, 0) n_{ab}(\Delta', 0) \rangle \\ &\times e^{-(2/3)(\Delta - \Delta')^2 t T}, \\ &\text{for } T < t < \tau_L. \end{aligned} \quad (19)$$

A geometrical interpretation of the inhibition of optical dephasing in broadband transients can be proposed in the frame of the Bloch vector representation in the specific case of strong field. This picture also supports the slow decay rate of the relaxation phenomenon. The components of the Bloch vector  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  read

$$\begin{aligned} u &= \frac{1}{\sqrt{2}} [r_{ab}(\Delta, t) + r_{ba}(\Delta, t)], \\ v &= \frac{i}{\sqrt{2}} [r_{ba}(\Delta, t) - r_{ab}(\Delta, t)], \\ w &= n_{ab}(\Delta, t). \end{aligned} \quad (20)$$

The second-order moment of the coherences is directly related to the expectation value of  $\langle \mathbf{B}(\Delta, t) \mathbf{B}(\Delta', t) \rangle$ ,

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{B}(\Delta, t) \mathbf{B}(\Delta', t) \rangle &= \langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle \\ &+ \langle r_{ba}(\Delta, t) r_{ab}(\Delta', t) \rangle \\ &+ \langle n_{ab}(\Delta, t) n_{ab}(\Delta', t) \rangle. \end{aligned} \quad (21)$$

The evolution equation of  $\langle \mathbf{B}(\Delta, t) \mathbf{B}(\Delta', t) \rangle$  is derived from the evolution equations of the components of  $\langle \mathbf{Y}(t) \rangle$  [Eq. (10)]. A straightforward calculation leads to the following result:

$$\langle \mathbf{B}(\Delta, t) \mathbf{B}(\Delta', t) \rangle = \langle \mathbf{B}(\Delta, 0) \mathbf{B}(\Delta', 0) \rangle e^{-(2/3)(\Delta - \Delta')^2 t T}, \quad (22)$$

with provision that  $\Delta_D T \ll 1$ . This equation is verified whatever the time  $t$  is in the pulse interval, even when  $t < T$ . Then from Eqs. (19) and (22) one obtains

$$\langle r_{ab}(\Delta, t) r_{ba}(\Delta', t) \rangle = \frac{1}{3} \langle \mathbf{B}(\Delta, t) \mathbf{B}(\Delta', t) \rangle, \quad (23)$$

when  $\alpha \ll 1$  and  $t > T$ . The geometrical picture aims at demonstrating these two results. Since the length of the Bloch vector remains unchanged for a given velocity class, the temporal evolution of any vector can be depicted by the diffusion of the Bloch vector headings on the Bloch sphere.

In the Bloch frame of vectors  $(\mathbf{i}, \mathbf{j}, \mathbf{k})$ , the evolution of a single Bloch vector  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  is governed by the equation

$$\frac{d\mathbf{B}(\Delta, t)}{dt} = (\boldsymbol{\chi} + \Delta \mathbf{k}) \times \mathbf{B}(\Delta, t), \quad (24)$$

where  $\boldsymbol{\chi}$  is the vector of components  $(\chi + \chi^*)/2, (\chi - \chi^*)/2i, 0$ . Since we assume  $\chi \gg \Delta$ , the Bloch vector precesses around  $\boldsymbol{\chi}$ , which is contained in the plane  $(\mathbf{i}, \mathbf{j})$ . Due to the stochastic character of the field, the direction and amplitude of  $\boldsymbol{\chi}$  vary randomly during the pulse. The movement of  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  can be analyzed through a simple model which assumes that  $\boldsymbol{\chi}(t)$  changes every  $\tau_c$  time interval to a new amplitude and direction randomly distributed. During each elementary interval  $\tau_c$ , the field is supposed to be constant and the Bloch vector rotates an angle  $\chi^0 \tau_c$ . The condition  $\chi^0 \tau_c < 1$  ensures that the direction of  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  is little changed during the coherence time interval. The positions of  $\boldsymbol{\chi}(t)$  from step to step are independent and the successive rotations of amplitude  $\chi^0 \tau_c$  combine in a random walk of step duration  $\tau_c$  that results from the driving field operation. During the time interval  $t$ , the system undergoes  $t/\tau_c$  elementary rotations. The Bloch vector heading spreads over an angular domain

$$\chi^0 \tau_c \left[ \frac{t}{\tau_c} \right]^{1/2}.$$

The memory of the initial direction  $\mathbf{B}(\Delta, 0)$  is lost when this angle is close to unity, that is, on a time scale  $T = [(\chi^0)^2 \tau_c]^{-1}$ . Thus the parameter  $T$  which governs the time dependence of the matrix  $\mathbf{A}(t)$  [Eq. (11)] characterizes the diffusion time of a single Bloch vector under strong broadband excitation. As a consequence of the erratic course of the Bloch vector, the average values of the three factors

$$\begin{aligned} &\langle r_{ab}(\Delta, t)r_{ba}(\Delta, t) \rangle, \\ &\langle r_{ba}(\Delta, t)r_{ab}(\Delta, t) \rangle, \\ &\langle n_{ab}(\Delta, t)n_{ab}(\Delta, t) \rangle \end{aligned}$$

are equal to  $\frac{1}{3}$  after a time interval  $t > T$ , in agreement with Eq. (23).

As already mentioned, a single Bloch vector loses memory of its initial direction after the time interval  $T$  has elapsed. However, because of the condition  $\alpha \ll 1$ , the decay of the value of  $\langle \mathbf{B}(\Delta, t)\mathbf{B}(\Delta', t) \rangle$  during the same interval is weak [Eq. (22)]. Thus despite a global disorientation of a given Bloch vector  $\mathbf{B}(\Delta, t)$ , a correlation subsists between the relative evolution of any two Bloch vectors related to different velocity classes. This is analyzed through the temporal evolution of the angular separation of  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  and  $\mathbf{B}(\Delta', t)$ .

A parallel is proposed between the motion of the single Bloch vector  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  under the stochastic field operation in the Bloch frame and the motion of a single Bloch vector  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  in a frame bound to a Bloch vector of different velocity class  $\mathbf{B}(\Delta', t)$ . The motion of  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  in this new frame reflects the time evolution of the angular separation between  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  and  $\mathbf{B}(\Delta', t)$ . The evolution equation of  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  in the rotating frame of instantaneous rotation vector  $(\chi + \Delta' \mathbf{k})$  is deduced from its expression in the Bloch frame [Eq. (24)] by the relation

$$\begin{aligned} \left[ \frac{d\mathbf{B}(\Delta, t)}{dt} \right]_{\text{rot. frame}} &= \left[ \frac{d\mathbf{B}(\Delta, t)}{dt} \right]_{\text{ref. frame}} \\ &+ \mathbf{B}(\Delta, t) \times [\chi(t) + \Delta' \mathbf{k}]. \end{aligned} \quad (25)$$

Taking into account Eq. (24) one gets

$$\left[ \frac{d\mathbf{B}(\Delta, t)}{dt} \right]_{\text{rot. frame}} = (\Delta - \Delta') \mathbf{k} \times \mathbf{B}(\Delta, t). \quad (26)$$

The expression is formally analogous to that of Eq. (24), but the incrementing time step  $\tau_c$  of the random walk undergone by  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  heading in the Bloch frame is replaced by  $T$  in the rotating frame, since  $T$  is the characteristic time for orientation change of the rotating frame. The angular separation increases by  $(\Delta' - \Delta)T$  at each elementary step  $T$  when the two Bloch vectors  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  and  $\mathbf{B}(\Delta', t)$  have lost memory of their initial directions. The strong-field condition  $\Delta_D T < 1$  shows that after  $T$  has elapsed any two Bloch vectors are close together, whereas each of them has diffused a large angle. The final angular separation at the time  $t$  is  $(\Delta' - \Delta)(t/T)^{1/2}$ . The correlation between the evolution of the two velocity classes is lost when  $(\Delta' - \Delta)T(t/T)^{1/2} \cong 1$ , that is, for

$$t^{-1} = (\Delta' - \Delta)^2 T.$$

This factor coincides with the decay rate of the slow relaxation term involved in the strong-field limit [Eq. (22)].

A similar diffusion effect on a sphere is encountered in spin-echo experiments.<sup>15</sup> The diffusion process is caused by the influence on a specific atom of the local magnetic field which originates in moments carried by neighboring atoms. The stochastic character of this local field reflects the Brownian motion of the dipoles and nucleus. The diffusion results in an exponential decrease of the magnetic moment of the form  $e^{-K^2 \tau_c t}$ , where  $\tau_c$  is the incremental step and

$$K^2 = \frac{1}{3} \gamma^2 \langle |\mathbf{h}|^2 \rangle.$$

$\gamma$  is the gyromagnetic ratio and  $\mathbf{h}$  the local magnetic field. Similarly, in the present case,  $\langle \mathbf{B}(\Delta, t)\mathbf{B}(\Delta', t) \rangle$  includes a relaxation term of the form

$$e^{-(2/3)(\Delta - \Delta')^2 T t}.$$

This expression suggests that the spectral domain can be divided into slices of dimension  $1/\sqrt{tT}$  which undergo coherent excitation. In the limit  $t = \tau_L$ , the phases are locked over spectral ranges  $\chi(\tau_c/\tau_L)^{1/2}$ . A complete inhibition of the inhomogeneous dephasing is observed when the  $\Delta_D^2 \tau_L T \ll 1$ , which is identical to  $\chi(\tau_c/\tau_L)^{1/2} \gg \Delta_D$ , is fulfilled, that is, when the excitation is coherent over the entire spectral range.

The conditions  $\Delta_D^2 \tau_L T \ll 1$  and  $T > \tau_c$  characterize the very-strong-field regime. In this limit, the change of angular separation  $|\Delta - \Delta'| T$  of two Bloch vectors over a step is negligible and the directions of the Bloch vectors are locked together from an elementary step  $T$  to the other. Furthermore,

$$\langle \mathbf{B}(\Delta, t)\mathbf{B}(\Delta', t) \rangle = \mathbf{B}(\Delta, 0)\mathbf{B}(\Delta', 0), \quad \text{at any time } t. \quad (27)$$

If  $\mathbf{B}(\Delta, 0)$  and  $\mathbf{B}(\Delta', 0)$  are assumed to point in the same direction at  $t = 0$  one also gets

$$\mathbf{B}(\Delta, t)\mathbf{B}(\Delta', t) \leq \mathbf{B}(\Delta, 0)\mathbf{B}(\Delta', 0). \quad (28)$$

The combination of these two relations suggests that a significant value of the signal should be obtained in a single realization of the very strong field since the relation (27) holds in this case for nonaveraged values of  $\mathbf{B}(\Delta, t)\mathbf{B}(\Delta', t)$ .

### III. EXPRESSION OF A STIMULATED PHOTON ECHO PROBED BY A STRONG BROADBAND FIELD

#### A. Physical system

In this section, the model is applied to calculate the intensity of a stimulated photon echo. The strong broadband field is the last of the three-pulse excitation sequence. This field is uncorrelated with the two first ones that are weak and mutually coherent since they issue from the same source. The physical system is very simi-

lar to that involved in our previous experiment on broadband-stimulated photon echo which has been described in Sec. I.<sup>8</sup> But in the present excitation scheme, we consider a three-level system (Fig. 1). The two weak angled beams engrave a thick grating in the population difference  $n_{ab}(\delta, t)$ . The probe pulse resonantly excites a transition  $b-c$  and creates dipoles from the initial population stored in the  $b$  level. The echo results from the Bragg diffraction of the strong probe beam by the thick grating. Under weak field conditions, the grating amplitude reduces to its fundamental Fourier components  $n_{ab}^{(1)}(\delta, t)e^{-i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}}$  and  $n_{ab}^{(-1)}(\delta, t)e^{+i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}}$ . As previously mentioned,  $\mathbf{K}$  is the Bragg vector  $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  (see Sec. I). We restrict our calculation to the signal emitted in the  $\mathbf{K} + \mathbf{k}_3$  direction which nearly propagates in the  $\mathbf{k}_2$  direction provided that  $\mathbf{k}_3$  and  $\mathbf{k}_1$  are parallel and that the frequencies of the transition  $a-b$  and  $b-c$  are not too much different. Hence, in this specific problem, the signal is built on the second-order moment of the coherences  $\langle r_{bc}(\Delta, t)r_{cb}(\Delta', t) \rangle$ , where  $\Delta$  and  $\Delta'$  are the Doppler shifts related to the  $b-c$  transition, i.e.,  $\Delta = |\mathbf{k}_3|v_z$ ,  $\Delta' = |\mathbf{k}_3|v'_z$ . The initial conditions are taken into account through the factor

$$\langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0)n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle,$$

where  $\delta$  and  $\delta'$  are the Doppler shifts related to the

$a-b$  transition, i.e.,  $\delta = kv_z$  and  $\delta' = kv'_z$  with  $k = |\mathbf{k}_1| = |\mathbf{k}_2|$ .

### B. Expression of the echo in the general case

The energy radiated by the atomic dipoles is the sum of two contributions: the energy which is emitted during the probe pulse when the broadband strong field interacts with the atomic system, and the energy which is emitted after the probe pulse has elapsed. The expectation value  $\langle W \rangle$  of the total energy is the sum of

$$\langle W_1 \rangle = \int_0^{\tau_L} dt \langle I_1(t) \rangle, \quad (29)$$

where  $\langle I_1(t) \rangle$  is the power which is emitted at time  $t$  during the pulse interval, and of

$$\langle W_2 \rangle = \int_{\tau_L}^{\infty} dt \langle I_2(t) \rangle, \quad (30)$$

where  $\langle I_2(t) \rangle$  is the power which is emitted at time  $t$  after the pulse has elapsed. The power emitted during the pulse interval reads

$$\langle I_1(t) \rangle \propto \int \int d\Delta d\Delta' \langle r_{bc}(\Delta, t)r_{cb}(\Delta', t) \rangle. \quad (31)$$

Under the assumption that  $\chi^0\tau_c < 1$ , the value of  $\langle r_{bc}(\Delta, t)r_{cb}(\Delta', t) \rangle$  is given by Eq. (14) of Sec. II. It follows that

$$\langle I_1(t) \rangle \propto \int \int d\Delta d\Delta' P_1(\Delta - \Delta', t) \langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0)n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle, \quad t \leq \tau_L. \quad (32)$$

After the probe pulse has elapsed, the phase of the remaining excited dipoles evolves freely under Doppler effect and  $\langle I_2(t) \rangle$  reads

$$\langle I_2(t) \rangle \propto \int \int d\Delta d\Delta' P_1(\Delta - \Delta', t = \tau_L) e^{i(\Delta - \Delta')(t - \tau_L)} \langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0)n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle, \quad t > \tau_L. \quad (33)$$

The expression of  $P_1(\Delta - \Delta', t)$  [Eq. (15)] implies that in the general case  $\langle I_1(t) \rangle$  is the sum of three time-dependent contributions.

Before giving the analytical expressions of  $\langle I_1(t) \rangle$  and  $\langle I_2(t) \rangle$  in the strong-field regime, let us turn to the weak-field situation which supposes that the condition  $T \gg \tau_L$  is fulfilled. In this case, the expression of  $P_1(\Delta - \Delta', t)$  involves two terms of very slow decay rate  $T^{-1}$ ,

$$P_1(\Delta - \Delta', t) \cong \frac{1}{i(\Delta - \Delta')T} (1 - e^{i(\Delta - \Delta')t}).$$

It is straightforward to state that

$$\begin{aligned} \langle I_1(t) \rangle &= 1/T \int \int d\Delta d\Delta' \int_0^t dt' e^{i(\Delta - \Delta')(t - t')} \langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0)n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle, \quad t \leq \tau_L \\ \langle I_2(t) \rangle &= 1/T \int \int d\Delta d\Delta' \int_0^{\tau_L} dt' e^{i(\Delta - \Delta')(t - t')} \langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0)n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle, \quad t > \tau_L. \end{aligned} \quad (34)$$

This mathematical description of the weak-field signal demonstrates that the echo at time  $t$  is built from the partial contributions of all the dipoles that are created at any time  $t'$  before, by the field. The corresponding total radiated energy reads

$$\langle W \rangle = \langle W_1 \rangle + \langle W_2 \rangle = \frac{\tau_L}{T} \int_0^{\infty} d\tau \int \int d\Delta d\Delta' e^{i(\Delta - \Delta')\tau} \langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0)n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle. \quad (35)$$

Since  $(\tau_L/T) = [\chi^0]^2 \tau_c \tau_L$ , this expression is identical to that derived from a perturbative treatment of the stochastic Bloch equation [Eq. (13), Ref. 8].

### C. Analytic expression of the echo in the strong-field regime

As previously mentioned, in this case, the echo intensity is governed by the slowly varying term

$$\begin{aligned} \langle I_1(t) \rangle &= \frac{1}{3} \int \int d\Delta d\Delta' e^{-(2/3)(\Delta-\Delta')^2 T t} \langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0) n_{ab}^{(1)*}(\delta, t=0) \rangle, \quad t \leq \tau_L \\ \langle I_2(t) \rangle &= \frac{1}{3} \int \int d\Delta d\Delta' e^{-(2/3)(\Delta-\Delta')^2 T \tau_L} e^{i(\Delta-\Delta')(t-\tau_L)} \langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0) n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle, \quad t > \tau_L. \end{aligned} \quad (36)$$

The expression of

$$\langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0) n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle$$

is discussed in Ref. 8.

$$\langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0) n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle \propto n_{ab}^{(0)}(\delta) n_{ab}^{(0)*}(\delta') e^{-i(\delta-\delta')t_{12}} [1 + \psi(\delta-\delta')], \quad (37)$$

where  $n_{ab}^{(0)}(\delta)$  is the equilibrium velocity distribution. The first contribution on the right-hand side is the signature of the mutual coherence of the two first pulses. The phase factor  $e^{i(\delta-\delta')t_{12}}$  is the mathematical manifestation of the thick grating which is engraved in the population difference. The second contribution originates the incoherent part of the signal which exists whenever the pulses are uncorrelated.  $\psi(\delta-\delta')$  is proportional to the modulus square of the Fourier transform of the pulse envelope. Its characteristic width is  $\tau_L^{-1}$ ,

$$\psi(\delta-\delta') = \left| \int dt [\chi^0(t)]^2 e^{i(\delta-\delta')t} / \int dt [\chi^0(t)]^2 \right|^2, \quad (38)$$

where  $\chi^0(t)$  is the envelope of the first pulses.

The expression of

$$\langle n_{ab}^{(1)}(\delta, t=0) n_{ab}^{(1)*}(\delta', t=0) \rangle$$

implies that both  $\langle I_1(t) \rangle$  and  $\langle I_2(t) \rangle$  are the sum of a coherent and an incoherent signals which are built on

$$n_{ab}^{(0)}(\delta) n_{ab}^{(0)*}(\delta') e^{-i(\delta-\delta')t_{12}}$$

on the one hand and

$$n_{ab}^{(0)}(\delta) n_{ab}^{(0)*}(\delta') e^{-i(\delta-\delta')t_{12}} \psi(\delta, \delta')$$

on the other hand. The equilibrium Maxwell-Boltzmann velocity distribution reads

$$n_{ab}^{(0)}(\delta) = n_{ab}^{(0)}(0) e^{-\delta^2/\delta_0^2} = n_{ab}^{(0)}(0) e^{-\Delta^2/\Delta_0^2},$$

where  $\delta = \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{v}$ ,  $\Delta = \mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{v}$ ,  $\delta_0 = k_1(2RT/M)^{1/2}$  and  $\Delta_0 = k_3(2RT/M)^{1/2}$ . The Doppler width on the upper level  $\Delta_D$  is related to  $\Delta_0$  by the formula

$$\Delta_D(\text{HWHM}) = \Delta_0 \sqrt{\ln 2},$$

where HWHM denotes half-width at half maximum.

At first, we calculate the coherent intensities  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}}$  and  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}}$ . They are straightforwardly derived from Eqs. (15), (18), (32), and (33), respectively. They read

$$\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}} = \frac{2\sqrt{2}}{3\sqrt{\ln 2}} \Delta_D^2 [n_{ab}^{(0)}(0)]^2 [1 + 4\Delta_D^2 T t / (3 \ln 2)]^{-1/2} \exp \left[ -\frac{\Delta_D^2 t_{12}^2}{1 + 4\Delta_D^2 T t / (3 \ln 2)} \frac{k_1^2}{k_3^3} \frac{1}{2 \ln 2} \right], \quad t < \tau_L \quad (39)$$

and

$$\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}} = \frac{2\sqrt{2}}{3\sqrt{\ln 2}} \Delta_D^2 [n_{ab}^{(0)}(0)]^2 [1 + 4\Delta_D^2 T \tau_L / (3 \ln 2)]^{-1/2} \exp \left[ -\frac{\Delta_D^2 (t - t_{12} k_1/k_3 - \tau_L)^2}{1 + 4\Delta_D^2 T \tau_L / (3 \ln 2)} \frac{1}{2 \ln 2} \right], \quad t > \tau_L. \quad (40)$$

These expressions are readily interpreted in the frame of a spectral-domain picture which has been already developed in Sec. IID. This analysis can be extended in order to get a quantitative interpretation of the two terms  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}}$  and  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}}$ . Within the pulse duration ( $t < \tau_L$ ), the coherence between the evolution of the different velocity classes is preserved over spectral domains of order  $\Delta_{\text{coh}}(t)$ ,

$$\Delta_{\text{coh}}(t) = \Delta_D [1 + 4\Delta_D^2 T t / (3 \ln 2)]^{-1/2}. \quad (41)$$

Two dipoles with Doppler shifts  $\Delta$  and  $\Delta'$ , which belong to such a slice, keep their initial phase difference  $(\Delta - \Delta')t_{12}k_1/k_3$ , which has been built from the grating stored in the population velocity distribution. Summa-

tion of the coherent contributions over the slice gives the factor

$$I(t_{12}) = \exp(-\{[\Delta_{\text{coh}}(t)t_{12}k_1/k_3]^2/(2 \ln 2)\}).$$

The relevant dipoles radiate a signal proportional to their square,

$$N_{\text{coh}}^2 = N_0^2 (\Delta_{\text{coh}}/\Delta_D)^2,$$

where  $N_0$  is the total number of atoms. The contributions from the different slices add incoherently to produce the total signal, the intensity of which is proportional to the number  $\Delta_D/\Delta_{\text{coh}}$  of independent slices. It follows that

$$\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}} \propto N_0^2 (\Delta_{\text{coh}} / \Delta_D) I(t_{12}) .$$

This expression matches Eq. (39), since

$$n_{ab}^{(0)}(0) = (\sqrt{\ln 2} / \pi) N_0 / \Delta_D .$$

A similar interpretation holds for the expression of  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}}$ . However, in this case, after the third pulse has elapsed, the size of the coherent slices no longer evolves. It is equal to

$$\Delta'_{\text{coh}} = \Delta_D [1 + 4\Delta_D^2 T \tau_L / (3 \ln 2)]^{-1/2} . \quad (42)$$

The system evolution is governed by the Doppler effect. At time  $t$ , we get that the relevant phase difference between two dipoles inside a given slice reads  $\phi'_{\text{coh}} = -(\Delta - \Delta')(t - t_{12} k_1 / k_3 - \tau_L)$ . This leads to the expression of Eq. (40). When  $t_{12}$  is positive,  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}}$  exhibits a peak of width  $\Delta'_{\text{coh}}$  at time  $t = t_{12} k_1 / k_3 + \tau_L$ , which corresponds to the rephasing of the dipoles inside a coherent slice.

Secondly, we calculate the incoherent part of the signal. It differs from the expression of the coherent contributions because of the term  $\Psi(\delta - \delta')$ . The characteristic width of this function,  $\tau_L^{-1}$ , determines the size of coherent slices. This size is smaller than  $\Delta_{\text{coh}}(t)$  [cf. Eq. (41)] since  $T \ll \tau_L$  according to the initial assumptions:  $T \ll \Delta_D^{-1} \ll \tau_L$ . The relaxation factor  $\exp[-(2/3)(\Delta - \Delta')^2 T t]$  for a slice of width  $\tau_L^{-1}$  is thus close to unity. The expressions of  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{incoh}}$  and  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{incoh}}$  read

$$\begin{aligned} \langle I_1(t) \rangle^{\text{incoh}} &\cong \frac{1}{3} [n_{ab}^{(0)}(0)]^2 \Delta_D \\ &\times \int d\Omega \Psi(\Omega) \exp(-i\Omega t_{12}), \quad t \leq \tau_L \end{aligned} \quad (43)$$

$$\begin{aligned} \langle I_2(t) \rangle^{\text{incoh}} &\cong \frac{1}{3} [n_{ab}^{(0)}(0)]^2 \Delta_D \\ &\times \int d\Omega \Psi(\Omega) \exp[-i\Omega(t - t_{12} k_1 / k_3 - \tau_L)] k_3 / k_1, \\ &t > \tau_L \end{aligned} \quad (44)$$

where  $\Omega = \delta - \delta'$ , and

$$\begin{aligned} &\int d\Omega \Psi(\Omega) \exp(-i\Omega t_{12}) \\ &= 2\pi \int dt |\chi_1^0(t)|^2 |\chi_1^0(t - t_{12})|^2 / \left[ \int dt |\chi_1^0(t)|^2 \right]^2 . \end{aligned}$$

Since the pulse envelope is a slowly varying function time,  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{incoh}}$  and  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{incoh}}$  vary slowly with respect to  $t_{12}$ , on the time scale of  $\tau_L$ . At  $t_{12} = 0$ , where  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}}$  takes on its maximum value under assumption of a rectangular-shaped pulse,  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{incoh}}$  takes the value

$$(2\pi/3) [n_{ab}^{(0)}(0)]^2 \Delta_D \tau_L^{-1} .$$

From Eq. (39) we get that the ratio  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}} / \langle I_1(t) \rangle^{\text{incoh}}$  reads

$$\begin{aligned} \langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}} / \langle I_1(t) \rangle^{\text{incoh}} &= \frac{\sqrt{2}}{\pi \sqrt{\ln 2}} \frac{\Delta_D \tau_L}{[1 + 4\Delta_D^2 T t / (3 \ln 2)]^{-1/2}} . \end{aligned}$$

This ratio is always larger than unity in the frame of our initial assumptions ( $T \ll \Delta_D^{-1} \ll \tau_L$ ) and it increases with the field strength. In the very-strong-field regime ( $\Delta_D^2 T \tau_L \ll 1$ ) it reaches the maximum value  $\Delta_D \tau_L \gg 1$ . At time  $t_{12} k_1 / k_3 + \tau_L$ , which corresponds to the maximum of  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}}$ , the ratio  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}} / \langle I_2(t) \rangle^{\text{incoh}}$  is derived from Eqs. (40) and (44). One obtains

$$\begin{aligned} \langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}} / \langle I_2(t) \rangle^{\text{incoh}} &\cong (\pi \sqrt{2} / \sqrt{\ln 2}) \Delta_D \tau_L [1 + 4\Delta_D^2 T \tau_L / (3 \ln 2)]^{-1/2} \gg 1 . \end{aligned} \quad (45)$$

A graphical representation of the *coherent contributions* to the signal, which are predominant, is displayed in Fig. 2 as a function of time for two different values of  $t_{12}$  ( $t_{12} = 0$  and  $t_{12} \neq 0$ ). The temporal evolution of the signal is depicted in the general case of the strong-field model of Sec. II ( $\Delta_D T \ll 1$  and  $\chi_3^0 \tau_c < 1$ ) by curve 4. As previously mentioned, the signal exhibits a peak at  $t = t_{12} k_1 / k_3 + \tau_L$  (for  $t_{12} > 0$ ). Its width is  $(\Delta'_{\text{coh}})^{-1}$ , in agreement with the free evolution of the dipoles after the extinction of the probe pulse. This profile evolves to the curve 3 when  $t_{12} = 0$ . The shape of the profile is represented by the curves 2 ( $t_{12} \neq 0$ ) and 1 ( $t_{12} = 0$ ) when the very-strong-field regime is attained ( $\Delta_D^2 T \tau_L \ll 1$ ). The value of the field strength for curve 3 is the same as for curve 4. The width of the peak is a decreasing function of the field strength, and it approaches  $\Delta_D^{-1}$  in the very-strong-field case (curve 2).

The energy which is emitted during the pulse by the coherent contribution can be deduced from Eq. (39). In the case of very-strong-field excitation ( $\Delta_D^2 T \tau_L \ll 1$ ), it takes on the simple form

$$\begin{aligned} \langle W_1 \rangle^{\text{coh}} &= \frac{2\sqrt{2}}{3\sqrt{2}} \Delta_D^2 [n_{ab}^{(0)}(0)]^2 \\ &\times \tau_L \exp\{-[(\Delta_D t_{12} k_1 / k_3)^2 / (2 \ln 2)]\} . \end{aligned} \quad (46)$$

The coherent and incoherent contributions are both emitted during the same time interval  $\tau_L$ . Therefore their energy ratio is identical to their intensity ratio which is given by Eq. (44) at  $t_{12} = 0$ . It implies that almost all the energy which is radiated during the probe pulse results from the coherent emission of the dipoles. In the same way, we can compare the energies which are radiated in the coherent and in the incoherent contribution after the pulse has elapsed. The coherent contribution reads

$$\begin{aligned} \langle W_2 \rangle^{\text{coh}} &= (\frac{2}{3} \sqrt{\pi}) \Delta_D [n_{ab}^{(0)}(0)]^2 \\ &\times \text{erfc}[-(2 \ln 2)^{-1/2} \Delta_D t_{12} k_1 / k_3] \end{aligned} \quad (47)$$

where

$$\text{erfc}(x) = (2/\sqrt{\pi}) \int_x^\infty \exp(-t^2) dt .$$

This contribution is emitted within a time interval of order  $(\Delta'_{\text{coh}})^{-1}$ , while the incoherent one is emitted during a time interval of order  $\tau_L$ . Therefore their energy ratio differs from their intensity ratio,

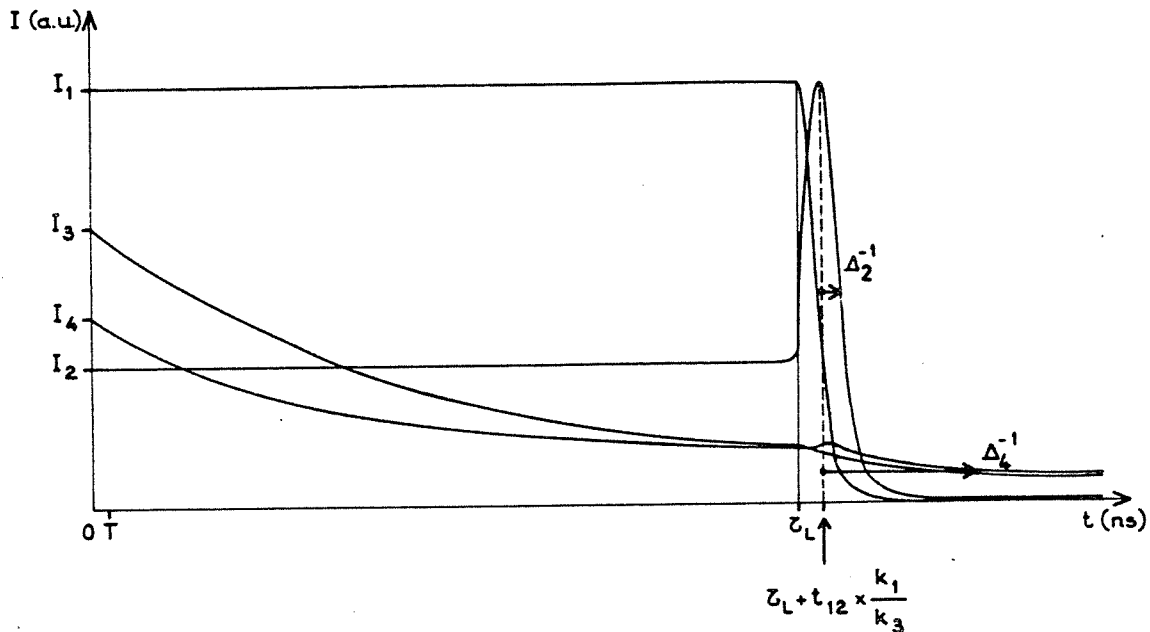


FIG. 2. Time evolution of the coherent signals  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}}$  and  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}}$  [Eqs. (33) and (34)]. The curves labeled 1, 2, 3, and 4 represent  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}}$  and  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}}$  as functions of time under the strong-field conditions  $\Delta_D T < 1$  and  $\chi \tau_c < 1$ . The values of  $\tau_L = 7$  ns and  $\Delta_D^{-1} = 0.21$  ns are the experimental ones (Sec. V B). The absolute intensities are arbitrary but their relative values are meaningful. Curves 1 and 2 show the profile under very-strong-field conditions  $\Delta_D^2 \tau_L T \ll 1$ . Regarding curve 1,  $t_{12} = 0$  and

$$I_1 = \frac{2\sqrt{2}}{3\sqrt{\ln 2}} \Delta_D^2 [n_{ab}^0(0)]^2.$$

For curve 2,  $I_2 = I_1/3$ , which corresponds to  $t_{12} = 0.245$  ns. The width of the peak is  $\Delta_2^{-1} = \sqrt{2} \ln 2 \Delta_D^{-1} = 0.206$  ns. Curves 3 and 4 are drawn for a set of real experimental parameters (see Sec. V B):  $\chi_3^0 = 7.710^9 \text{ s}^{-1}$ ,  $\tau_c = 0.1$  ns, and therefore  $\Delta_D^2 \tau_L T \approx 26$ . Curve 3 corresponds to  $t_{12} = 0$ , curve 4 corresponds to  $t_{12} = 0.245$  ns. The width of the peak (curve 4) is

$$\Delta_4^{-1} = \sqrt{2} \Delta_D^{-1} \ln 2 \left[ 1 + \frac{4}{3 \ln 2} \Delta_D^2 \tau_L T \right]^{1/2} = 1.48 \text{ ns}.$$

$$\langle W_2 \rangle^{\text{coh}} / \langle W_2 \rangle^{\text{incoh}} \cong (\Delta'_{\text{coh}} \tau_L)^{-1} \langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}} / \langle I_2(t) \rangle^{\text{incoh}}. \quad (48)$$

From Eq. (45) it follows that

$$\langle W_2 \rangle^{\text{coh}} / \langle W_2 \rangle^{\text{incoh}} \cong 1.$$

Furthermore, the energy ratio of the coherent contributions is derived from Eqs. (46) and (47). One obtains

$$\langle W_1 \rangle^{\text{coh}} / \langle W_2 \rangle^{\text{coh}} \cong \Delta_D \tau_L \gg 1.$$

In summary, the relative orders of magnitude of the different contributions to the signal obey the following inequalities:

$$\langle W_1 \rangle^{\text{coh}} \gg \langle W_1 \rangle^{\text{incoh}},$$

$$\langle W_1 \rangle^{\text{coh}} \gg \langle W_2 \rangle^{\text{coh}} \cong \langle W_2 \rangle^{\text{incoh}}.$$

The relative importance of the coherent contributions can be observed on Fig. 2. Indeed, for a given set of parameters  $t_{12}$  and  $\chi_3^0$ , the energy emitted during the pulse,

$\langle W_1 \rangle^{\text{coh}}$ , is measured by the area under the relevant curve limited on the right-hand side at  $t = \tau_L$ , whereas the energy emitted after the pulse has elapsed,  $\langle W_2 \rangle^{\text{coh}}$ , is measured by the area under the same curve limited on the left-hand side at  $t = \tau_L$ .

In conclusion, it is noteworthy that in the very-strong-field regime,  $\Delta_D^2 \tau_L T \ll 1$ , the expression of  $\langle W_1 \rangle^{\text{coh}}$  reduces to a simple form which is straightforwardly derived from Eqs. (36) and (37),

$$\langle W_1 \rangle^{\text{coh}} = (\tau_L / 3) (k_3^2 / k_1^2) \times \left| \int d\delta n_{ab}^{(0)}(\delta) \exp(-i\delta t_{12}) \right|^2, \quad (49)$$

$$\langle W_1 \rangle^{\text{coh}} \propto |\hat{n}_{ab}^{(0)}(t_{12})|^2,$$

where  $\hat{n}_{ab}^{(0)}(t)$  is the Fourier transform of the velocity distribution  $n_{ab}^{(0)}(kv)$ . Since  $\langle W \rangle$  nearly coincides with  $\langle W_1 \rangle^{\text{coh}}$ , the analysis of the signal variations with respect to  $t_{12}$  provides direct access to the Doppler width.

#### IV. COMPARISON BETWEEN INHOMOGENEOUS BROADENING INHIBITION UNDER STRONG MONOCHROMATIC OR BROADBAND EXCITATIONS

##### A. Inhibition of a stochastic broadening by a monochromatic field

In recent experiments, relaxation of optical signals by a stochastic perturbation has been observed under the regime of intense excitation both in solids and in vapors.<sup>16,17</sup> The inhibition of inhomogeneous broadening plays a major role. This effect has been first put into evidence by De Voe and Brewer<sup>16</sup> through the measurement of optical free-induction decay on an impurity-ion crystal  $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ . The relevant stochastic perturbation is a random fluctuation of the resonance frequency of the  $\text{Pr}^{3+}$  ions. It is caused by the flip-flop motion of the F nuclear spins which originates a time-dependent magnetic field at each  $\text{Pr}^{3+}$ . An equivalent situation is obtained in vapors when the fluctuation of the atom resonance frequency is produced by velocity-changing collisions. This case has been investigated by Yodh *et al.*<sup>17</sup> in a photon-echo experiment on the intercombination line of atomic Yb vapor collisionally perturbed by argon. These experiments have renewed the interest for the description of saturation effects that appear when an intense optical excitation is used. It addresses the problem of the ability of the optical Bloch equations to describe relaxation phenomena under strong-field conditions. A review of the limiting conditions under which these equations retain their validity has been given by Berman and Brewer.<sup>18</sup> Finally, the inhibition of inhomogeneous broadening has been demonstrated in a photon-echo experiment in Yb vapor.<sup>19</sup> This time, no stochastic process enters the problem since the inhomogeneous broadening results from the constant Doppler shift of the frequency. All these experiments involve monochromatic fields.

As regards the specific situation addressed in this paper, the stochastic perturbation does not affect the broadening, but is related to the broadband field itself. In contrast with the case of monochromatic excitation, all the atoms undergo simultaneously the same fluctuations.

##### B. Comparison between the phase-locking processes under monochromatic and broadband excitation

The phase-locking process under broadband excitation has been disentangled in a physical picture within the frame of Bloch vector representation. The validity of this picture is restricted to the case where the Kubo parameter  $\chi\tau_c$  is less than unity. However, the situation  $\chi\tau_c < 1$  is not appropriate to compare the effects of broadening inhibition under strong broadband excitation on the one hand and under strong monochromatic excitation on the other hand, which assumes a rapid precession of the Bloch vector around  $\beta(\Delta, t) = (\chi + \Delta\mathbf{k})$ . So we address the puzzling problem of the influence of a strong broadband excitation on inhomogeneous dephasing when  $\chi\tau_c > 1$ . In this case, analytical solutions of the stochastic Bloch equations are not available, but a physical picture can be proposed which predicts the general behavior of

the echo signal. This picture is straightforwardly derived from the evolution of Bloch vector under monochromatic field operation that we first consider. The characteristic time of the evolution is the precession period  $1/\chi$  of a Bloch vector around the fixed direction of the field (Fig. 3). As in the previous picture (Sec. II D), information is deduced from the time dependence of the angular separation of two Bloch vectors of different velocity classes  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  and  $\mathbf{B}(0, t)$  for sake of simplicity. The angular separation between  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  and  $\mathbf{B}(0, t)$  driven by a coherent excitation originates from two effects. The first one is related to the difference of the precession period. One gets after a single revolution

$$\frac{1}{\chi} [(\chi^2 + \Delta^2)^{1/2} - (\chi^2)^{1/2}] \cong \Delta^2/\chi^2, \quad (50)$$

when  $\Delta/\chi < 1$  (similar to the condition  $\Delta_D T < 1$ ). The angular separation which results from the cumulative effects over  $t\chi$  revolutions reads  $(\Delta^2/\chi)t$ . It leads to a very weak relaxation term of the form  $e^{-\Delta^2 t/\chi}$ , when  $t < \chi/\Delta^2$ . The second effect occurs because the different Bloch vectors precess around vectors  $\beta(\Delta)$ , the directions of which depend on the velocity. It induces a periodic angular separation of the Bloch vectors which is maximum at half a revolution and is of the order of  $\Delta/\chi$  for  $t < \Delta^{-1}$ . When the field is so strong that  $\Delta/\chi \ll 1$ , the dipole phases are frozen all during the field operation.

The analogy between the monochromatic and broadband cases is ensured by the condition  $\chi\tau_c \gg 1$ . It implies that during an elementary step  $\tau_c$ , any Bloch vector undergoes a large number of revolutions around  $\beta(\Delta, t)$ . Since  $\chi\tau_c \gg 1$ , memory of the previous direction of the Bloch vector is lost at each elementary step. During  $\tau_c$ , the field may be considered as constant in direction and amplitude and the resulting angular separation is similar to that produced by a monochromatic field and is of the order of  $\Delta/\chi$ . The direction of the field is randomly distributed from step to step, and in the broadband case the

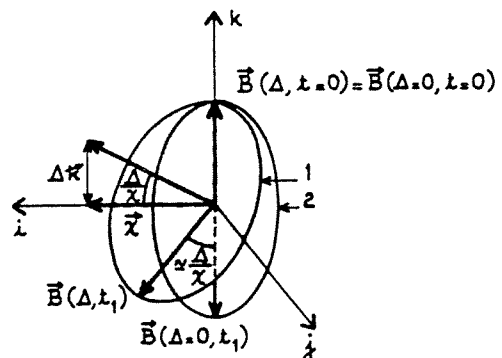


FIG. 3. Evolution of two Bloch vectors driven by a strong monochromatic field. Two Bloch vectors are initially parallel to the unitary vector  $\mathbf{k}$  of the Bloch frame.  $\Delta$  is small compared to  $\chi$ . The  $\mathbf{B}(\Delta, t)$  heading evolves on the circle denoted by 1 with a precession frequency  $|\Delta\mathbf{k} + \chi|$  and the  $\mathbf{B}(0, t)$  heading evolves on the circle denoted by 2 with a precession frequency  $|\chi|$ .

effect is cumulative. The final angular separation results from a quadratic sum of the incoherent elementary separations and reads

$$\frac{\Delta^2}{\chi^2} \frac{t}{\tau_c}$$

The spread of the Bloch headings is just the same as that observed under broadband excitation when  $\chi\tau_c < 1$ . Hence the same relaxation term  $e^{-\Delta^2 t}$  describes both processes. This picture suggests that the analytical expressions of statistical moments derived under the assumption  $\chi\tau_c < 1$  would possibly still hold even when  $\chi\tau_c > 1$ .

Through the various experiments, a strong *monochromatic* field has proved to be an efficient tool to inhibit stochastic inhomogeneous dephasing. In the limit of a very strong field,  $\chi(\tau_c/\tau_L)^{1/2} > \Delta_D$ , a *broadband excitation* results in an instantaneous locking of the Doppler phases of the dipoles. Hence it is not out of sense to question on the ability of a strong broadband excitation to inhibit the dephasing produced by a stochastic perturbation. Consider the case of velocity-changing collisions. It results for a given atom in randomly distributed frequency jumps of the order of  $k\Delta v$ . With provision that the field strength verifies the condition  $\chi(\tau_c/\tau_L)^{1/2} \gg k\Delta v$  whatever  $\Delta v$ , one could expect this phase diffusion produced by a stochastic perturbation to be inhibited.

## V. EXPERIMENTAL RESULTS

### A. Experimental setup

The stimulated echo process is produced in a calcium vapor. The relevant levels *a*, *b*, and *c* respectively corresponds to  $4s^2^1S_0$ ,  $4s4p^3P_1$  and  $4s5s^3S_1$ . The modulation of period  $\lambda/t_{12}$  is stored in the velocity distribution of the  $4s4p^3P_1$  level, the lifetime of which is 0.55 ns.<sup>20</sup> The first two pulses are beam splitted from a single pulsed dye laser (DCM dye) which is tuned to the  $4s^2^1S_0$ - $4s4p^3P_1$  transition at 6572.78 Å. The delay  $t_{12}$  between the two-first pulses is varied over the range 2 ns around the position  $t_{12}=0$ . The spectral width of the source is about 10 GHz and the temporal width is 7 ns. The probe pulse tuned to the transition  $4s4p^3P_1$ - $4s5s^3S_1$  at 6122.22 Å is provided by a grazing-incidence-type pulsed dye laser using Rhodamine 640. In order to improve the homogeneity of the grating illumination an anamorphose set of four prisms is introduced in the cavity between the cell and the grating. It has been shown that in such a configuration a partial phase locking between the different modes may occur.<sup>21</sup> A simple calculation shows that the effect may give rise to periodic satellite signals with respect to  $t_{12}$ . The period  $2L/c$  is governed by the length of the cavity. In the present experiment, *L* equals 30 cm. The first satellite is 2 ns distant from the main signal and is just at the edge of the scanned  $t_{12}$  range. As a consequence, it is easy to eliminate this effect if any. The spectral width of this second source is also 10 GHz and the pulse duration is about 9

ns. The last value has been measured with a fast photodiode. The delay between pulse 3 and pulse 1 is about 10 ns much larger than the extremum value of  $t_{12}$ . The time delays between the pulse are short enough so that the transverse Doppler effect and the diffusion of the population grating are still negligible. The two dye laser are simultaneously pumped by a Nd yttrium aluminum garnet (YAG) laser at the rate of 15 s<sup>-1</sup>. The sample illuminated by the excitation pulse sequence is contained in a cell of 20 cm active length. The temperature is 730 K which corresponds to a vapor pressure of 10<sup>-4</sup> torr.

The echo signal emitted at  $\lambda=6122.22$  Å is detected by a photomultiplier. Spatial and spectral filtering are combined with polarization in order to reject the intense laser beams which nearly copropagate with the echo signal. The wave vectors  $\mathbf{k}_1$  and  $\mathbf{k}_2$  of the two pulses at 6572 Å make a 10-mrad angle. The probe pulse (pulse at 6122 Å) wave vector is aligned with  $\mathbf{k}_1$  so that the echo direction nearly coincides with  $\mathbf{k}_2$ . This direction is selected by spatial filtering which allows a satisfactory elimination of the probe pulse and of pulse 1 even under strong-field regime. Pulse 2 is suppressed by the polarization configuration. All beams are linearly polarized but pulse 3 is right-angle polarized with respect to the two others. So is also the echo radiation which is selected through an analyzer. The residual background signal at 6572 Å is suppressed by the use of dielectric filters. The delay between pulses 1 and 2 can be continuously varied by a motorized optical delay line composed of three corner cube retroreflectors. Two of them are fastened to a mobile chart which is guided by a track made of two polished stainless-steel rods. The line moves to and fro over a 2 ns domain on both sides of  $t_{12}=0$  in 20 s. The curve which represents the  $t_{12}$  dependence of the signal intensity is obtained by averaging the data over 30 to and fro movements. A microcomputer collects the signal delivered by a gated integrator and the encoded position of the translation stage.

### B. Experimental profiles

The evolution of the  $t_{12}$  dependence of the echo intensity from the weak-field to the strong-field regime is obtained by varying the light flux of the probe beam. The maximum flux is  $\phi=2 \times 10^5$  W/cm<sup>2</sup>. The Rabi frequency depends upon  $\phi$  through the relation

$$[\chi_3^0]^2 = \frac{f_{bc} \lambda r_e \phi}{\hbar}$$

$f_{bc}=0.161$  is the oscillator strength of the transition,  $\lambda$  the radiation wavelength, and  $r_e$  the electron classical radius. For the strongest flux, the value of  $\chi_3^0$  is  $7.75 \times 10^{10}$  s<sup>-1</sup>. All the assumptions implied in the model calculation rely on the values of  $\tau_c$  and  $\Delta_D$ . We have recorded the intensity autocorrelation function by means of frequency doubling in an urea crystal (curve 4, Fig. 3). The order of magnitude of  $\tau_c$  is deduced from the width measurement,  $\tau_c \cong 100$  ps. The value of  $\Delta_D$  is  $4.7 \times 10^9$  s<sup>-1</sup>.

In order to observe the manifestations of the phase



locking as described by the model of Sec. II, the parameter  $T=1/([\chi_3^0]^2\tau_c)$  must satisfy the following inequalities:

$$\tau_c < T < \Delta_D^{-1},$$

that is,

$$7 \times 10^9 \text{ s}^{-1} < \chi_3^0 < 10^{10} \text{ s}^{-1},$$

the weak-field regime is attained when  $\chi_3^0 < 10^9 \text{ s}^{-1}$ . Figure 4 shows the experimental profiles obtained for three different typical values of  $\chi_3^0$ . Solid curve 1 corresponds to  $\chi_3^0 = 7.7 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$  ( $\phi_3 = 20 \text{ W/cm}^2$ ) and represents the

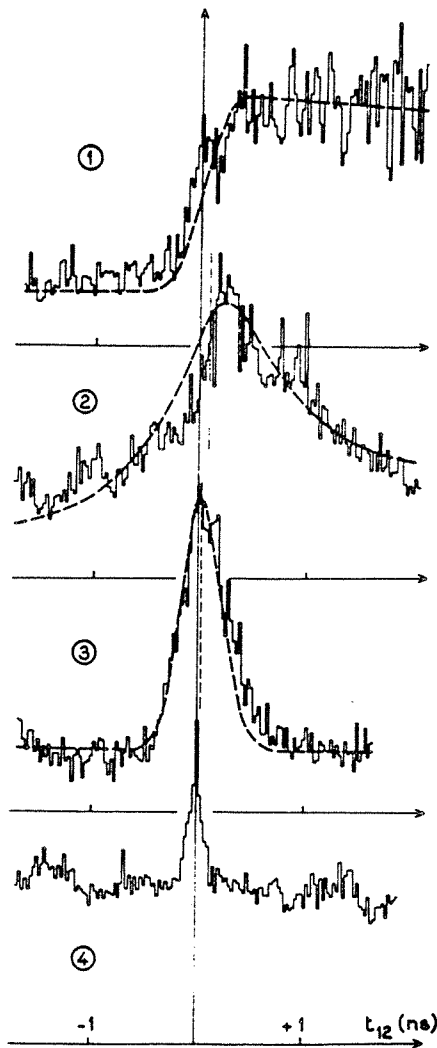


FIG. 4. Experimental profiles. Solid curve 1, weak-field limit  $\chi = 7.75 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ ; solid curve 2, the strong-field case  $\chi\tau_c < 1$ ,  $\chi = 7.75 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ ; solid curve 3, the very-strong-field case but  $\chi\tau_c > 1$ ,  $\chi = 7.75 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ ; solid curve 4, autocorrelation function of the field intensity. The dashed curves 1 and 2 correspond to model calculation (Sec. III). The dashed curve 3 is the square of the Fourier transform of the initial velocity distribution. The dashed axes denote the theoretical positions of  $t_{12} = 0$ . They are shifted from the experimental axis in order to get the best fit.

stimulated photon-echo signal in the weak-field limit as given by Eq. (35). Solid curve 2 corresponds to  $\chi_3^0 = 7.7 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$  ( $\phi_3 = 2 \text{ kW/cm}^2$ ) and represents the signal in the strong-field regime depicted by the previous model since in this case  $\Delta_D T < 1$ . Solid curve 3 corresponds to  $\chi_3^0 = 7.7 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$  ( $\phi_3 = 0.2 \text{ MW/cm}^2$ ) and represents the signal in a very-strong-field case ( $\Delta_D^2 \tau_L T < 1$ ) for which no analytical solution of the stochastic Bloch equation have been derived up to now, since  $\Delta_D T < 1$  but  $\chi_3^0 \tau_c > 1$ . Despite this last condition, the physical picture given in the Sec. IV predicts a profile similar to that which would be observed in a very-strong-field case, i.e.,  $\Delta_D^2 T \tau_L < 1$ , but under the assumption  $\chi_3^0 \tau_c < 1$ . As expected, the profile evolves from a asymmetrical shape in the weak-field regime to a nearly symmetrical shape around  $t_{12} = 0$  as the strength of the field increases. Curve 4 is the intensity autocorrelation function of the light.

### C. Comparison with the theoretical curves

Regarding the *coherent* part of the echo signal, the evolution of the profile is deduced from a numerical integration of  $\langle I_1(t) \rangle^{\text{coh}}$  and  $\langle I_2(t) \rangle^{\text{coh}}$ , in the frame of the model depicted in the Sec. III. The corresponding curves are presented on Fig. 5 with respect to the dimensionless parameter  $\alpha = \Delta_D T$ . The value of  $\Delta_D$  is the experimental one,  $4.7 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ . Curve 1 ( $\alpha = 60$ ) represents the profile in the weak-field limit  $[\chi_3^0]^2 \tau_c \tau_L < 1$ . Curves 2 and 3 show the evolution of the profile from the strong-field case  $\Delta_D T < 1$  (curve 2,  $\alpha = 0.6$ ) to the very-strong-field case (curve 3,  $\alpha = 0.06$ ) under the assumption  $\chi\tau_c < 1$ . The width of this last curve, 0.67 ns, approaches the value derived in the very-strong-field limit given by Eq. (49),  $\Delta t_{12} \cong 0.4 \text{ ns}$ .

Assuming that the main part of the signal originates from the coherent emissions, the theoretical profiles de-

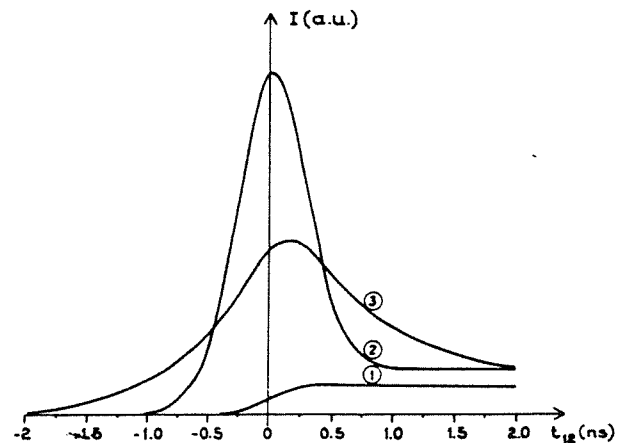


FIG. 5. Theoretical profiles. The three curves represent the evolution of the coherent part of the signal with respect to  $t_{12}$  in agreement with the model calculation (Sec. III). Curve 1, weak-field limit  $\Delta_D T = 60$  [Eq. (35)]; curve 2, strong-field limit  $\Delta_D T = 0.6$  [Eq. (32) and (33)]; curve 3, very-strong-field limit  $\Delta_D T = 0.06$  [Eq. (49)].

duced from Eqs. (35) (curve 1 of Fig. 4, weak-field regime) and (32) and (33) (curve 2 of Fig. 4, strong-field regime) have been calculated with the experimental values of the parameters  $\chi_3^0$ ,  $\tau_c$ , and  $\Delta_D$ , in order to fit the experimental profiles. They are plotted in Fig. 4 with dashed lines. A good agreement is observed in both cases. The slight discrepancies may result from the spatial inhomogeneities of the laser beams. Regarding curve 3 of the same figure, the dot-dashed line superimposed on the profile corresponds to the square of the Fourier transform of the velocity distribution as given by Eq. (49). The very good agreement observed between the experimental and calculated curves in this case supports the physical picture (Sec. IV), which implies that a similar behavior of the signal should be observed in both the cases  $\chi_3^0\tau_c < 1$  or  $\chi_3^0\tau_c > 1$ .

## VI. CONCLUSION

To summarize, we have developed a model to calculate broadband coherent transient optical signals with pro-

vision that a single strong field with short correlation time is involved. The stochastic character of the field results in inhibition of the inhomogeneous broadening. This effect has been experimentally demonstrated in a three-level photon-echo configuration.

The theoretical treatment assumes that the field strength is restricted to the case  $\chi\tau_c < 1$ . A physical picture of the process has been given in the frame of the Bloch vector representation. The domain of investigation has been experimentally extended to the case  $\chi\tau_c > 1$ , for which the phase-locking process is also observed. The relevant geometrical picture demonstrates that the time evolution of the system can be incremented by elementary steps  $\tau_c$  during which the stochastic field behaves as a strong monochromatic excitation. In a parent paper, we have developed a diagrammatic method to calculate the second-order moments of the coherences and populations under strong stochastic field regime.<sup>22</sup> It applies to the preceding case and is extended to the case of two time-delayed correlated pulses provided that one field is weak. Experimental work is in progress to test the predictions in this later case.

- 
- <sup>1</sup>S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, and M. Matsuoka, *Phys. Rev. A* **29**, 2286 (1984).  
<sup>2</sup>H. Nakatsuka, M. Tomita, M. Fujiwara, and S. Asaka, *Opt. Commun.* **52**, 150 (1984).  
<sup>3</sup>N. Morita and T. Yajima, *Phys. Rev. A* **30**, 2525 (1984).  
<sup>4</sup>M. Fujiwara, R. Kuroda, and H. Nakatsuka, *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1634 (1985).  
<sup>5</sup>J. E. Golub and T. W. Mossberg, *Opt. Lett.* **11**, 431 (1986).  
<sup>6</sup>R. Beach, D. De Beer, and S. R. Hartmann, *Phys. Rev. A* **32**, 3467 (1986).  
<sup>7</sup>M. Defour, J.-C. Keller, and J.-L. Le Gouët, *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 544 (1986).  
<sup>8</sup>M. Defour, J.-C. Keller, and J.-L. Le Gouët, *Phys. Rev. A* **36**, 5226 (1987).  
<sup>9</sup>H. Nakatsuka, J. Okada, and M. Matsuoka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **37**, 1406 (1974).  
<sup>10</sup>B. W. Shore, *J. Opt. Soc. Am. B* **1**, 176 (1984).  
<sup>11</sup>P. Agostini, A. T. Georges, S. E. Weatly, P. Lambropoulos, and M. D. Levenson, *J. Phys. B* **11**, 1733 (1978).  
<sup>12</sup>A. Brissaud and U. Frisch, *J. Math. Phys.* **15**, 524 (1974).  
<sup>13</sup>N. G. Van Kampen, *Stochastic Processes in Physics and Chemistry* (North-Holland, Amsterdam, 1981), Chap. XIV.  
<sup>14</sup>R. Friedberg (unpublished).  
<sup>15</sup>H. Y. Carr and E. M. Purcell, *Phys. Rev.* **94**, 630 (1954).  
<sup>16</sup>A. Schenzle, M. Mitsunaga, R. G. De Voe, and R. G. Brewer, *Phys. Rev. A* **30**, 325 (1984).  
<sup>17</sup>A. G. Yodh, J. Golub, N. W. Carlson, and T. W. Mossberg, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 659 (1984).  
<sup>18</sup>P. R. Berman and R. G. Brewer, *Phys. Rev. A* **32**, 2784 (1985).  
<sup>19</sup>N. W. Carlson, W. R. Babbitt, Y. S. Bai, and T. W. Mossberg, *Opt. Lett.* **9**, 232 (1984).  
<sup>20</sup>G. Guisfredi, P. Minguzzi, F. Strumia, and M. Tonelli, *Z. Phys. A* **274**, 279 (1975).  
<sup>21</sup>L. A. Westling, M. G. Raymer, and J. J. Snyder, *J. Opt. Soc. Am.* **1**, 150 (1984).  
<sup>22</sup>P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, and J.-L. Le Gouët (unpublished).

## Article 5



# Physical Review Letters (sous presse)

## Non-Markovian Strong Field Excitation of Optical Coherent Transients

P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët

Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II,  
Batiment 505, 91405 Orsay Cédex, France.

**Abstract:** A Transient, Time-Delayed, Four-Wave Mixing experiment is performed in Strontium vapor under stochastic excitation conditions. The first two broad-bandwidth laser pulses are correlated and their delay is adjustable. Thus they combine into a Non-Markovian excitation process with adjustable memory time. One of the correlated pulses is allowed to be strong. In contrast with previous investigations, it is shown both theoretically and experimentally that under strong field conditions, the atoms are not able to keep the excitation memory over time intervals longer than the inverse laser bandwidth.

**P.A.C.S.:** 42.50 Md, 32.90+a

A large amount of works has been devoted for years to fluorescence induced by resonant interaction with a broad-bandwidth, intense, electromagnetic field [1]. The analytical description of this interaction illustrates the linear stochastic differential equation problem. Two important parameters in this problem are the correlation time of the stochastic field  $\tau_m$ , and the characteristic time of evolution of the driven system  $T$ . As long as  $\tau_m < T$ , averaged solutions are obtained without further specification of the stochastic process. Since  $T$  is a decreasing function of the driving field intensity, one ultimately enters the long correlation time domain  $\tau_m > T$  on increasing the field strength. Then the problem is solved only for some specific driving processes. Much attention has been paid for years to the special case of Markov processes, which enables one to substitute a master equation for the initial stochastic differential equation [2]. Many efforts have been devoted to the more specific case where excitation is achieved by a randomly time-varying jump-like Markov process [1]. In contrast, we consider a Non-Markov excitation process which is provided by a sequence of time-delayed, correlated, broadband, light pulses. This excitation scheme is used in a Transient Time-Delayed Four Wave Mixing (TDFWM) configuration which is of practical interest to investigate ultrafast phenomena with a temporal resolution as short as the coherence time of the broadband pulses [3-7]. The strong field situation in similar configurations was considered in recent experiments [8,9] but the observed features were not conclusively interpreted. Those experiments raise the following question: how long an atom which interacts with a given field at a given time is able to keep memory of this interaction and to recognize the same instantaneous field at a later time? We answer this question both experimentally and theoretically in

a specific situation.

In this experiment, Strontium vapor is resonantly excited on the transition  $5s^2 \ ^1S_0 - 5s5p \ ^3P_1$  at  $\lambda=689$  nm by a two-pulse sequence. The upper level decay rate to the ground level is  $4.8 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ . The cell is heated at  $420^\circ\text{C}$ , which corresponds to a vapor pressure of  $2.7 \cdot 10^{-4}$  Torr. A small angle is made between the beam wavevectors  $\mathbf{k}_1$  and  $\mathbf{k}_2$ . The two pulses are beam-split from a single pulse of duration  $\tau_L \sim 10\text{ns}$  which issues from a Nd:YAG-laser-pumped broadband dye laser. This way, two correlated pulses are prepared. The angled beams build a Bragg grating inside the atomic level population. The Bragg vector is  $\mathbf{K}=\mathbf{k}_2-\mathbf{k}_1$ . The two pulses time-overlap inside the interaction volume. They synchronously excite the atomic system, save for a small adjustable shift  $t_{12} \ll \tau_L$ . The sign of  $t_{12}$  is defined in such a way that  $t_{12}$  is positive when the pulse along  $\mathbf{k}_1$  reaches the sample before the pulse along  $\mathbf{k}_2$ . 60 ns after the first two pulses, a time-non-overlapping weak probe pulse, which propagates along  $\mathbf{k}_2$ , is scattered in direction  $\mathbf{k}_1$  by the grating,. The scattered intensity is measured as a function of  $t_{12}$ .

The coupling of a stochastic field  $\mathbf{E}(t)\cos[\omega t-\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}+\varphi(t)]$  with the two-level atoms is characterized by the Rabi frequency  $\Omega(t)=\mathbf{E}(t) e^{i\varphi(t)}\mu\hbar^{-1}$  where  $\mu$  is the dipole moment of the transition. The autocorrelation function of the field ,

$$g(\tau)=\langle\Omega(t)\Omega^*(t+\tau)\rangle/\langle|\Omega(t)|^2\rangle \quad (1)$$

is directly determined in a side experiment [10]. For that purpose the laser

beam is split into two time-separated components with an adjustable delay  $\tau$ . Both components overlap on a photodiode array detector where they interfere. The Fourier component of the intensity spatial distribution, at the frequency of the interference pattern, corresponds to the fringe contrast. Its variation as a function of  $\tau$  draws  $g(\tau)$  (Fig.1). The integral  $\int_0^\infty g(\tau)d\tau$  is the coherence time of the light, which identifies with its inverse spectral width. On Fig.1,  $\tau_c = 15\text{ps}$ . Parameters of importance are expressed in terms of the effective interaction rate  $T^{-1} = \langle |\Omega(t)|^2 \rangle \tau_c$ . The ratios  $\tau_L/T$  and  $\tau_c/T$  are the effective numbers of interactions respectively during the pulse duration and during the light coherence time. In the present TDFWM situation the excitation is achieved by a composite field with long correlation-time. This field reads  $\chi(\mathbf{r}, t) = \Omega_2(t) + \Omega_1(t)e^{i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}}$ . It combines  $\Omega_1(t)$  and  $\Omega_2(t)$  which propagate along  $\mathbf{k}_1$  and  $\mathbf{k}_2$  respectively. The correlation of the two components is expressed by  $\Omega_1(t) \propto \Omega_2(t+t_{12})$ . The composite field value at time  $t$  is thus correlated to its value at time  $t \pm t_{12}$ , where the geometrical delay  $t_{12}$  can be made much larger than the coherence time of the light source. The relevant correlation time  $\tau_m$  for this composite field is whichever of  $\tau_c$  and  $t_{12}$  is larger. The weak field condition  $\tau_L/T \ll 1$  is fulfilled by  $\Omega_1(t)$ .

The signal intensity as a function of  $t_{12}$  has been recorded for different values of  $\Omega_2(t)$  which range from the weak field regime (Fig.2) to the strong field situation (Fig.3 where  $T = .1\text{nSec}$ ) within the limits of the requirement  $\tau_c/T \ll 1$ . The weak field profile has been discussed previously [7]. It reflects the atomic dipole capability for long time storage of excitation memory. Interacting with the same instantaneous field at two different



times, atoms are able to recognize the correlation between those two interactions even if their time separation exceeds  $\tau_c$ . Thus atoms detect long time correlation (i.e. over intervals larger than  $\tau_c$ ) inside the composite field. The weak field profile corresponds to the switch over of the signal emission from direction  $\mathbf{k}_1$  to direction  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  when  $t_{12}$  is varied across zero. This switch over occurs on the time scale of the inverse Doppler width  $\Delta_D^{-1}$ . A drastic change occurs in the profile when  $\Omega_2(t)$  is increased. The strong field profile exhibits a sharp dip at  $t_{12}=0$ . Its width is close to that of  $g(\tau)$  on Fig.1. By varying the spectral width of the source we have verified that the width of the dip is proportional to  $\tau_c$ . Out of the dip region, the profile is as flat as it would be if the excitation pulses were not correlated. Indeed, with uncorrelated pulses, the time scale of variation of the signal intensity as a function of  $t_{12}$  is  $\tau_L \sim 10$ nsec. This suggests that the memory time is reduced to  $\tau_c$  in the strong field regime. Since  $\Delta_D \tau_c \ll 1$ , the Doppler phase has not time enough to build up and the atoms behave as motion-less radiators. The following calculation confirms this picture.

The sample is regarded as an ensemble of motion-less atoms. The atomic levels are labeled a and b. Atoms are described by  $\sigma_a(\mathbf{r},t)$ , which denotes the level-population difference, and by  $\sigma_{\pm 1}(\mathbf{r},t)$  which is connected to the non-diagonal density matrix element  $\rho_{ab}(\mathbf{r},t)$  according to:

$$\begin{aligned} \sigma_1(\mathbf{r},t) &= \sqrt{2} \rho_{ab}(\mathbf{r},t) e^{i(\omega t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} \\ \sigma_{-1}(\mathbf{r},t) &= \sigma_1^*(\mathbf{r},t) \end{aligned} \quad (2)$$

The equation of motion reads:

$$\dot{\sigma}(\mathbf{r},t) = \mathbf{m}(\mathbf{r},t) \sigma(\mathbf{r},t) \quad (3)$$

where:

$$\mathbf{m}(\mathbf{r},t) = (1/\sqrt{2}) \begin{bmatrix} 0 & x(\mathbf{r},t) & 0 \\ x^*(\mathbf{r},t) & 0 & -x(\mathbf{r},t) \\ 0 & -x^*(\mathbf{r},t) & 0 \end{bmatrix} \quad (4)$$

and where

$$\sigma(\mathbf{r},t) = \begin{bmatrix} \sigma_{-1}(\mathbf{r},t) \\ \sigma_0(\mathbf{r},t) \\ \sigma_1(\mathbf{r},t) \end{bmatrix} \quad (5)$$

The signal field results from the combination of the elementary fields radiated by the individual dipoles. The relevant signal intensity is averaged over a large number of realizations. It reads  $\langle |\sum \rho_{ab}(n)|^2 \rangle$ , where the sum runs over the individual atoms and where  $\langle \rangle$  stands for the statistical average over signal realizations. The dominant contribution to this sum arises from the averaged cross products  $\langle \rho_{ab}(n) \rho_{ba}(m) \rangle$ . Thus the quantity to be calculated is  $\langle \Sigma(\mathbf{r},\mathbf{r}',t) \rangle = \langle \sigma(\mathbf{r},t) \otimes \sigma(\mathbf{r}',t) \rangle$ , where  $\otimes$  represents an outer product. From Eq. 3 one obtains [11]:

$$\langle \dot{\Sigma}(\mathbf{r},\mathbf{r}',t) \rangle = \int_0^t dt' \langle \mathbf{M}(\mathbf{r},\mathbf{r}',t) \mathbf{M}(\mathbf{r},\mathbf{r}',t') \Sigma(\mathbf{r},\mathbf{r}',t') \rangle \quad (6)$$

where :  $\mathbf{M}(\mathbf{r},\mathbf{r}',t) = \mathbf{m}(\mathbf{r},t) \otimes \mathbf{I} + \mathbf{I} \otimes \mathbf{m}(\mathbf{r}',t)$ . A solution to this equation is readily obtained without further characterization of the driving field in either of the three following situations [2]:

- i). the weak field condition ( $\tau_L/T \ll 1$ ) is satisfied by both  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$ .
- ii). the fields  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are *uncorrelated* and they both satisfy the short correlation time condition. The correlation time  $\tau_m$  then coincides with  $\tau_c$  and the condition reads  $\tau_c/T \ll 1$ .
- iii). the fields  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are *correlated* and the short correlation time condition now reads:  $\tau_c/T \ll 1$  and  $t_{12}/T \ll 1$ .

In the first case, the quantity  $\Sigma(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t')$  on the left hand side of Eq.6 is replaced by its initial non-fluctuating value. In the other two cases the variations of the atomic quantities may be decorrelated from the fluctuations of the driving field. Then Eq.6 reads:

$$\langle \dot{\Sigma}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) \rangle = \int_{-\infty}^t dt' \langle \mathbf{M}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) \mathbf{M}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t') \rangle \langle \Sigma(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) \rangle \quad (7)$$

It results that the quantities  $Y_i(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = \langle \sigma_i(\mathbf{r}, t) \sigma_{-i}(\mathbf{r}', t) \rangle$  verify the equation:

$$\dot{\mathbf{Y}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = -\mathbf{A}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) \mathbf{Y}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) \quad (8)$$

$$\text{where: } \mathbf{A}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = (1/2) \begin{bmatrix} a & b & 0 \\ b & a+a^* & b^* \\ 0 & b & a^* \end{bmatrix} \quad (9)$$

and where:

$$a = \int_{-\infty}^t dt' \langle x^*(\mathbf{r}, t) x(\mathbf{r}, t') + x(\mathbf{r}', t) x^*(\mathbf{r}', t') \rangle \quad (10)$$

$$b = - \int_{-\infty}^t dt' \langle x^*(\mathbf{r}', t) x(\mathbf{r}, t') + x(\mathbf{r}, t) x^*(\mathbf{r}', t') \rangle$$

The probe field is scattered on the population grating described by  $Y_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$ .

To first order in  $\Omega_1$ , it is an easy matter to extract the term  $y_0^{(\mathbf{k}_1)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  which originates the scattering in direction  $\mathbf{k}_1$ . When  $\Omega_2(t)$  is strong (i.e. when  $\langle |\int dt \Omega_2(t)|^2 \rangle \gg 1$ ), and starting with the initial condition  $Y_i(\mathbf{r}, \mathbf{r}', 0) = \delta_{i0}$ , one obtains:

$$y_0^{(\mathbf{k}_1)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = (2/9)(\Omega_1^0)^2 \tau_L \tau_C e^{i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')} \quad (11)$$

in the case when  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are *uncorrelated*, and:

$$y_0^{(\mathbf{k}_1)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = (1/9)(\Omega_1^0)^2 \tau_L \tau_C [2 - \beta(2 - \beta)] e^{i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')} \quad (12)$$

when  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are *correlated*, where  $\beta = \tau_C^{-1} \int_{|t_{12}|}^{\infty} g(\tau) d\tau$ , and where  $(\Omega_1^0)^2 \tau_L \tau_C = \langle |\int dt \Omega_1(t)|^2 \rangle$ . As soon as  $t_{12} > \tau_C$ , Eq.12 coincides with Eq.11. This suggests that strong field excitation prevents atoms from keeping memory of the field phase and amplitude over a time interval larger than  $\tau_C$ . Atoms are then no longer able to detect the long time correlation inside the composite field. The  $t_{12}$  dependence of the signal intensity is expected to conform to that of  $y_0^{(\mathbf{k}_1)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  in the region where  $t_{12} < T$ . This is verified on the experimental profile (Fig.3) where  $T = .1 \text{ nsec}$ .

Even if  $\tau_C \ll T$ , the short correlation time condition is violated when  $t_{12}$  is larger than the characteristic time of the atom evolution,  $T$ . For that case of long correlation time, no general method exists to solve Eq.6. Standard techniques require that the driving field is Markovian, while, in the present problem, the composite field  $x(\mathbf{r}, t)$  is a Non Markov process, irrespective of the stochastic properties of  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$ . Indeed, let  $t'$  be a

time such that  $t-t_{12} < t' < t$ . Then, the conditional probability density at time  $t$ , given the value at time  $t'$ , is not uniquely determined, since it is affected by the knowledge of the value at an earlier time  $t-t_{12}$  [2]. We have developed a diagrammatic method which has enabled us to calculate  $\langle \Sigma(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) \rangle$  for  $t_{12} > T$ , despite of the Non Markov character of the driving field [12,13]. When  $\Omega_2$  is strong, and to first order in  $\Omega_1$ , the resulting expression for  $y_0(\mathbf{k}_1)(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  confirms that the signal keeps no trace of the correlation between  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  as soon as  $t_{12} > \tau_C$ . It confirms that under strong field conditions the excitation memory is no longer kept by the atoms over time intervals longer than  $\tau_C$ .

The obliteration of memory over a time scale  $\tau_C$  in this specific Non Markov intense excitation is the main result of this paper. It should be emphasized that in analog experiments it has been previously suggested that the memory could be kept over a time scale  $T$  [8,9]. This conjecture relied on the Bloch picture of atomic motion. In that picture, the atomic system is represented by a vector which keeps the memory of its initial heading over the time scale  $T$ [9]. It was then inferred that the memory of correlation between the excitation pulses would be kept as long as  $t_{12} < T$ , and that the signal induced by correlated pulses would differ from the signal in an uncorrelated-pulse situation as long as  $t_{12} < T$ . Our present results clearly question this argument. Complementary experiments that we have performed on Sodium vapor indicate that the TDFWM signal is very sensitive to the atomic level structure. The two-level picture conveniently describes the considered transition in Strontium. It fails to predict observed features on the Sodium D lines, which connect levels with complex Zeeman and hyperfine

structure. Finally, the field  $\Omega_2$  can be varied experimentally out of the region where  $\tau_c \ll T$ . Then, additional wings to the sharp dip appear as  $\langle |\Omega_2(t)|^2 \rangle \tau_c^2$  is increased. This feature is being investigated on a theoretical ground, together with the signal formation when both  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are strong fields.

**References:**

[1]-Many references can be found in :

B. W. Shore, J. Opt. Soc. Am. B 1 176 (1984)

[2]-N. G. Van Kampen; Stochastic Processes in Physics and Chemistry, North-Holland (1981).

[3]-N. Morita, T. Yajima; Phys. Rev. A 30, 2525 (1984)

[4]-S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, M. Matsuoka;  
Phys. Rev. A 29 2286 (1984)

[5]- M. Fujiwara, R. Kuroda, H. Nakatsuka; J. Opt. Soc. Am. B 2 1634 (1985)

[6]-J. E. Golub, T. W. Mossberg; J. Opt. Soc. Am. B 3 554 (1986)

[7]-M. Defour, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët; J. Opt. Soc. Am. B 3 544 (1986)

[8]-R. Beach, D. De Beer, S.R. Hartmann; Phys. Rev. A 32 3467 (1985)

[9]-M. Defour, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët; Phys. Rev. A 36 5226 (1987)

[10]-P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët; to be published

[11]-A. Brissaud, U. Frisch; J. Math. Phys. 15 , 524 (1974).

[12]-R. G. Friedberg, S.R. Hartmann; J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.  
21 683 (1988)

[13]-P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët;  
J. Opt. Soc. Am.B. 5, 1293 (1988).

P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët;submitted to Phys. Rev. A



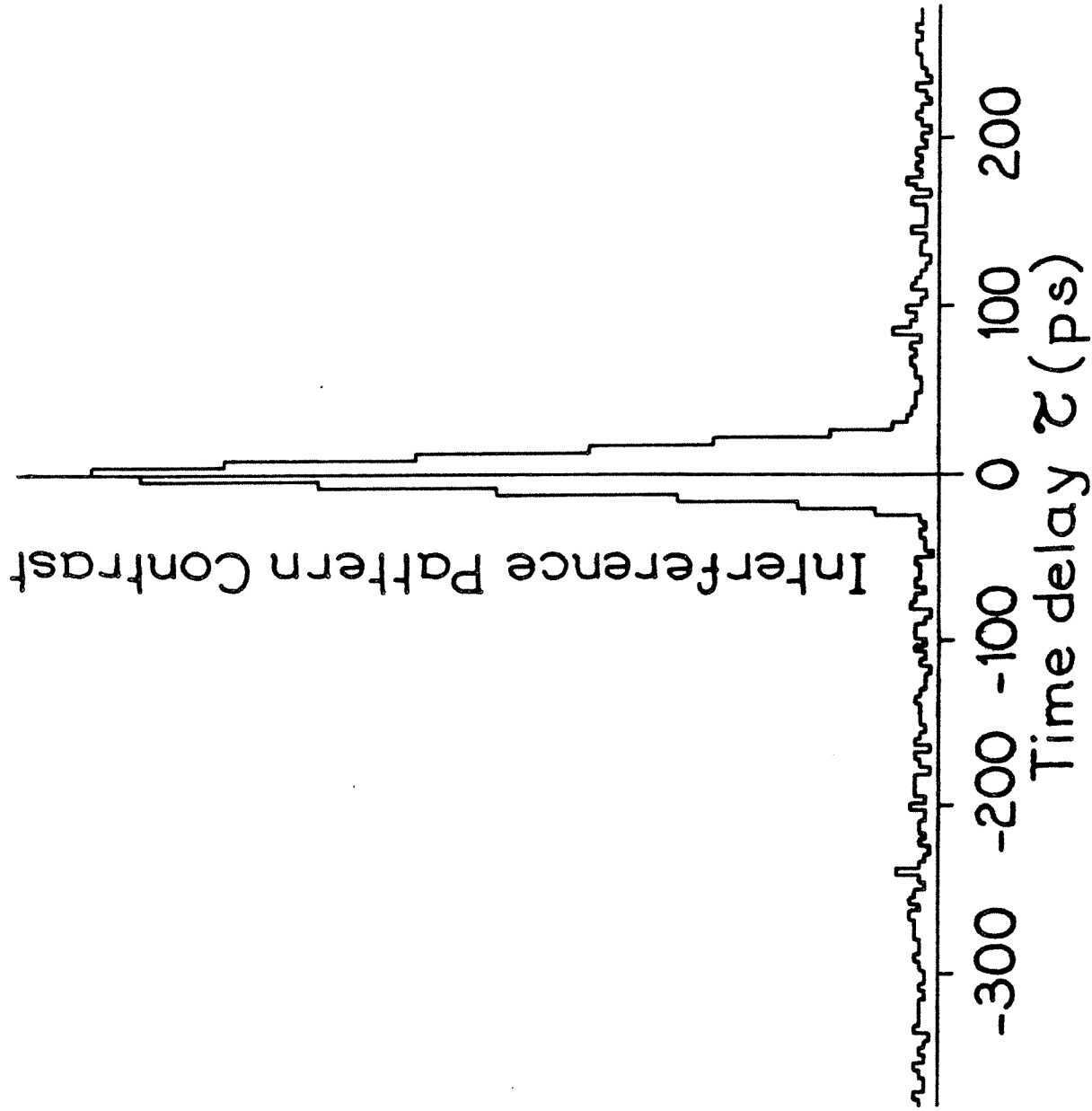
**Figure Captions:**

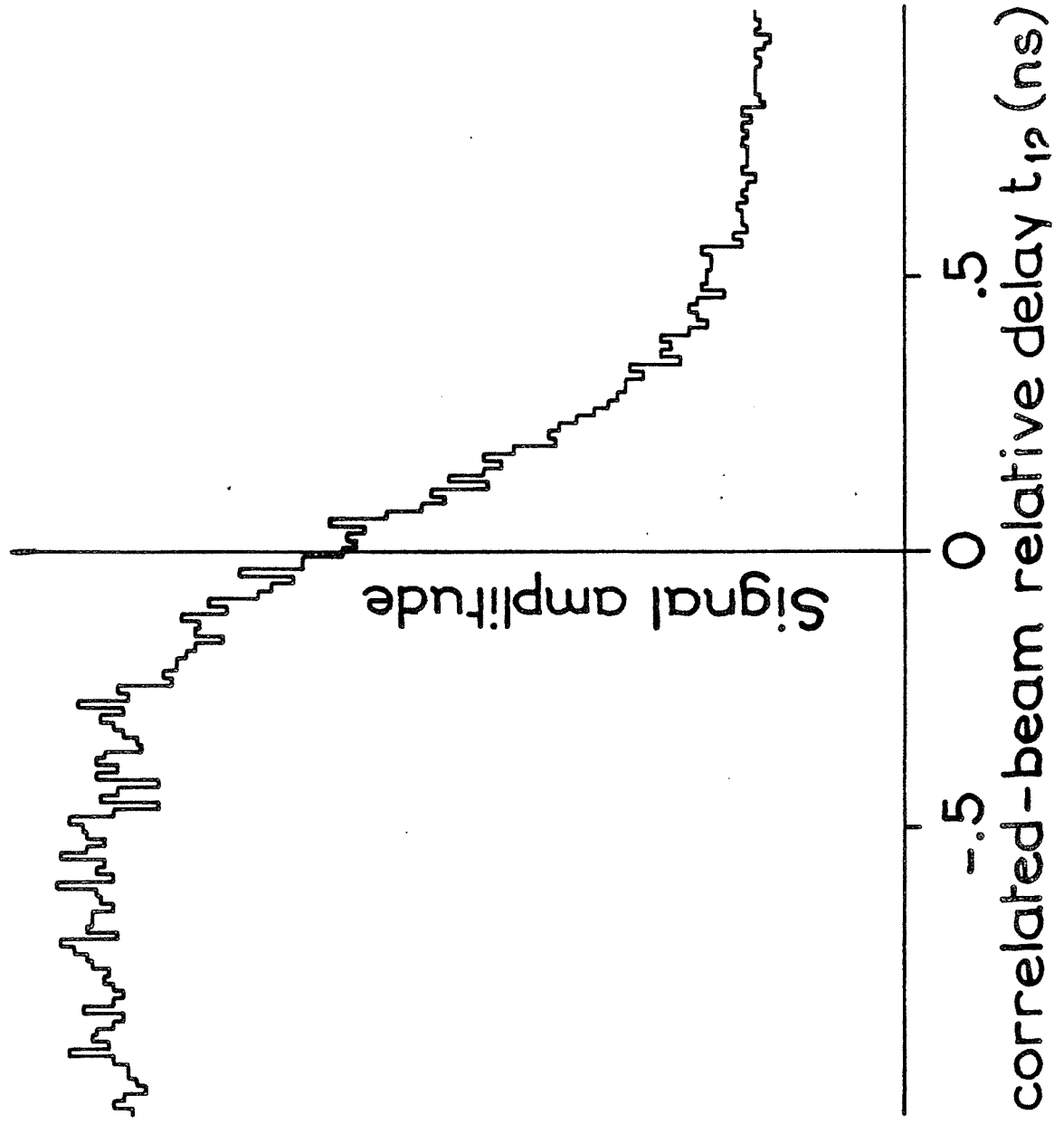
Fig.1- Autocorrelation function of the light source, recorded as the time-delay variation of the fringe contrast on the interference pattern.

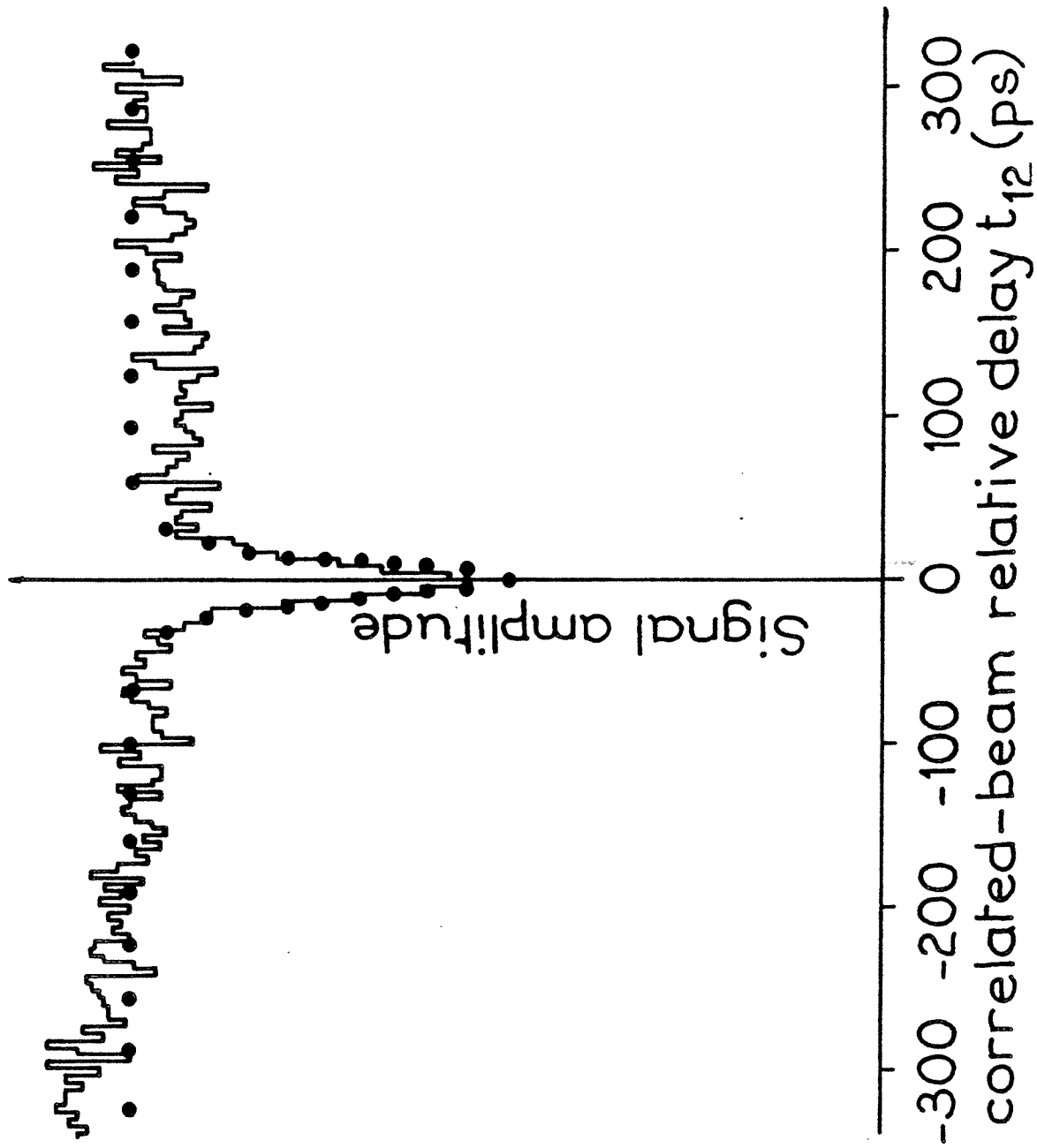
Fig.2- Experimental TDFWM signal in the weak field limit. Each point of the curve is averaged over about 200 laser shots.

Fig.3- Full line: experimental TDFWM signal when  $[\langle |\Omega_2(t)|^2 \rangle \tau_c]^{-1} \cong 100$  pSec. The corresponding autocorrelation function is that of Fig.1. Dotted line: theoretical profile according to Eq.12. The recorded autocorrelation function of Fig.1 has been substituted for  $g(\tau)$  in Eq.12.

















Nom : TCHENIO

Prénom : Paul

Titre : TRANSITOIRES COHERENTS EN LUMIERE  
INCOHERENTE : EFFETS DE CHAMP FORT

\*\*\*

### RESUME

Ce travail présente une analyse théorique et expérimentale du processus de mélange à quatre ondes produit par des impulsions intenses à large bande spectrale.

La première partie est consacrée aux effets de saturation produit par une seule impulsion de lumière incohérente. L'inhibition du déphasage inhomogène par le champ aléatoire, lorsqu'il est suffisamment intense, est le principal résultat de cette étude.

La seconde partie décrit l'excitation du système atomique par deux impulsions corrélées (obtenues par dédoublement, puis retard différentiel à partir d'une impulsion de lumière incohérente initiale). Nous avons développé une méthode diagrammatique permettant de calculer le signal produit lorsqu'une des impulsions est forte et l'autre faible. Le résultat paradoxal de cette étude est qu'en champ intense des impulsions issues de sources indépendantes produisent le même signal que des impulsions corrélées dès que le retard différentiel est supérieur au temps de cohérence des impulsions.

MOT CLES : Mélange à quatre ondes, échos de photon, spectroscopie subpicoseconde, excitation large bande intense, équation différentielle stochastique.