

ORSAY
n° d'ordre :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

THESE

présentée

Pour obtenir

Le TITRE de DOCTEUR en SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Martin DEFOUR

SUJET: Transitoires Coherents en Lumiere Incoherente

soutenue le 15 Juillet 1986

devant la Commission d'examen

MM. A. BESWICK

Président

P.R. BERMAN

J. DUPONT-ROC

J-C. KELLER

J-L. LE GOUET

ABSTRACT

This dissertation presents the experimental and theoretical analysis of a stimulated photon echo process which is produced by a sequence of broadband light pulses.

The coherence time τ_c of the light pulses is much smaller than their duration τ_L . When the two first pulses issue from the same source, the time resolution is determined by τ_c instead of τ_L . This feature is applied to the study of an atomic velocity distribution with width ω_D . Under the condition that :

$$\tau_c \ll \omega_D^{-1} \ll \tau_L$$

The characteristic time ω_D^{-1} may be determined with time resolution τ_c .

Power effects are examined in detail. Their theoretical analysis relies on the theory of stochastic linear differential equations. It is shown that none of the standard methods, which are used for solving these equations, may apply to the foreseen case.

Coherent transients produced by incoherent light pulses, should be well suited to the fast sampling of spectral line inhomogeneous width and to the study of fast relaxation and of high frequency quantum beats.

KEY WORDS : photon echoes, four wave mixing, broadband excitation, stochastic differential equation.

TABLE DES MATIERES

I.	INTRODUCTION.....	1
II.	SPECTROSCOPIE COHERENTE RESOLUE DANS LE TEMPS....	4
II.1.	Historique.....	4
II.1.1.	Introduction.....	4
II.1.2.	Résonance magnétique sur des jets atomiques.....	4
II.1.3.	Echos de spin.....	11
II.1.4.	Echos de photon.....	16
II.2.	Formation des échos de photons dans un système à deux niveaux par des impulsions colinéaires.....	18
II.2.1.	Excitation laser d'un système atomique à deux niveaux.....	18
II.2.2.	Rayonnement de précession libre....	22
II.2.3.	Echo de photon.....	25
II.2.4.	Echo de photon stimulé.....	32
II.3.	Généralisation : systèmes à plusieurs niveaux, impulsions excitatrices non colinéaires.....	35
II.3.1.	Composition des phases.....	35
II.3.2.	Echo simple.....	38
II.3.3.	Echo de photon stimulé.....	40
III.	ECHOS DE PHOTONS EN LUMIERE INCOHERENTE. LIMITE DES CHAMPS FAIBLES.....	45
III.1.	La résolution temporelle dans les expériences d'écho de photon.....	45
III.2.	Echo de photon stimulé en lumière incohérente.....	47
III.2.1.	Position du problème.....	47
III.2.2.	Expression formelle du signal....	48
III.3.	Expression du signal dans la limite des champs faibles.....	49
III.4.	Expression du signal en moyenne statistique.....	51
III.4.1.	Propriétés statistiques du champ excitateur.....	51
III.4.2.	Espérance mathématique du signal.	52
III.5.	Conclusion.....	57

IV.	EQUATIONS DE BLOCH A COEFFICIENTS ALEATOIRES.....	59
IV.1.	Introduction.....	59
IV.2.	Cas d'un champ $\chi(t)$ réel, avec $\Delta\tau_L \ll 1$	60
IV.3.	Cas d'un champ $\chi(t)$ complexe.....	61
IV.3.1.	Solution formelle. Développement de Magnus.....	61
IV.3.2.	Solution au premier ordre du déve- loppement de Magnus.....	63
IV.4.	Equation intégrodifférentielle de n_{ab} et approximation de "grain grossier".....	64
IV.5.	Approche statistique.....	67
IV.5.1.	Introduction.....	67
IV.5.2.	Equation de Bourret.....	67
IV.5.3.	Solution approchée de l'équation de Bloch compatible avec l'équation de Bourret.....	72
IV.5.4.	Comparaison des estimations de $\langle n_{ab} \rangle$ et de $\langle n_{ab}^2 \rangle$	73
IV.6.	Conclusion.....	77
V.	EXPRESSION DU SIGNAL D'ECHO DE PHOTON STIMULE EN CHAMP INTENSE.....	79
V.1.	Introduction.....	79
V.2.	Expression du signal lorsque $n_{ab} = n_{ab}^{(0)} \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n I(\Delta, t) ^{2n}$	80
V.3.	Approximations particulières.....	83
V.3.1.	Approximation de Magnus.....	83
V.3.2.	Approximation compatible avec l'équa- tion de Bourret.....	83
V.4.	Conclusion.....	85
VI.	MONTAGE EXPERIMENTAL.....	87
VI.1.	Echo de photon stimulé dans la vapeur de césium.....	87
VI.2.	VI.1.1. Principe de l'expérience.....	87
VI.1.2.	Quelques propriétés du césium.....	89
VI.2.	Dispositif expérimental.....	89
VI.2.1.	Source lumineuse.....	89
VI.2.2.	Décomposition en trois impulsions décalées dans le temps.....	91

VI.2.3. Four.....	93
VI.2.4. Sélection angulaire et temporelle du signal.....	93
VI.2.5. Polarisation des faisceaux.....	99
VI.2.6. Détection et acquisition.....	100
VII. RESULTATS EXPERIMENTAUX. DISCUSSION.....	102
VII.1. Conditions expérimentales.....	102
VII.1.1. Epaisseur optique de l'échantil- lon.....	102
VII.1.2. Fréquence de Rabi.....	103
VII.2. Etude en polarisations parallèles.....	104
VII.3. Etude en polarisations croisées.....	108
VII.4. Moyenne statistique et espérance mathéma- tique.....	109
VII.5. Battements quantiques et temps d'autocor- rélation.....	112
VIII. CONCLUSION.....	115
<u>APPENDICE A.</u> Calcul perturbatif du signal d'écho sti- mulé en lumière incohérente.....	118
<u>APPENDICE B.</u>	
B.1. Calcul de $\langle I_1(\Delta) ^{2n} I_1(\Delta') ^{2p} \rangle$	121
B.2. Expression du signal.....	123
B.3. Evaluation de $g_k(x)$ et de b^2 pour des appro- ximations particulières.....	125
B.3.1. Approximation de Magnus.....	125
B.3.2. Approximation compatible avec l'équa- tion de Bourret.....	126
REFERENCES.....	127

I. INTRODUCTION

I. INTRODUCTION

Au cours de ces dernières années, plusieurs expériences de spectroscopie cohérente résolue dans le temps ont été consacrées à l'étude de collisions atomiques en phase vapeur [1-4]. Les signaux recueillis dans ces expériences sont sensibles à l'angle de diffusion des particules et apportent donc une information sur la section efficace différentielle du processus collisionnel. Dans l'expérience d'écho de photon stimulé réalisée récemment au laboratoire [2], l'échantillon est un gaz constitué de systèmes à trois niveaux a, b, c. L'échantillon est illuminé par deux impulsions laser successives, séparées par un intervalle de temps t_{12} et accordées à la longueur d'onde λ de la transition a-b. Cette séquence d'impulsions construit dans la distribution de vitesse axiale des atomes une modulation de période λ/t_{12} . Cette structure est progressivement détruite par les changements de vitesse que produisent les collisions avec les atomes d'un gaz étranger. Une troisième impulsion, accordée à la transition b-c, sonde à l'instant t_3 ce qui subsiste de la modulation construite par les deux premières impulsions. Le taux de relaxation de cette modulation s'exprime en fonction de la section efficace des collisions qui produisent un changement de vitesse supérieur à λ/t_{12} . Une impulsion laser accordée à une transition entre un niveau c et un niveau b' voisin de b est susceptible de sonder le transfert collisionnel de b vers b' de la modulation construite par les deux premières impulsions dans la distribution de vitesse atomique. On détecte alors les atomes pour lesquels le changement de vitesse collisionnel au cours de ce transfert est inférieur à λ/t_{12} .

Il était récemment encore admis que l'excitation cohérente produite par une impulsion lumineuse de durée τ_L s'étendait sur un intervalle spectral de largeur τ_L^{-1} . Cette quantité fixait du même coup une borne supérieure λ/τ_L à la période de la modulation construite par les deux premières impulsions dans la distribution de vitesse atomique. Avec des impulsions

de l'ordre de 5 ns cette limite n'excède guère 50 m/s et restreint l'étude des changements de vitesse collisionnels au domaine des petits angles de diffusion.

De façon plus générale, il était admis que τ_L représentait la limite de résolution dans la détermination de l'intervalle entre des impulsions laser successives. Or, des études de relaxation de cohérences optiques [5-7] ont montré que cette limite de résolution est fixée, non par τ_L , mais par le temps d'autocorrélation τ_c de la lumière. Pour des impulsions à spectre non structuré, ce paramètre s'identifie à l'inverse de la largeur spectrale. Une source superradiante à large spectre d'émission permet ainsi d'atteindre sans grande difficulté un temps de résolution de l'ordre de la picoseconde alors que la durée de l'impulsion qu'elle délivre excède la nanoseconde.

La transposition de ces résultats dans le domaine spectral suggère qu'une corrélation peut être établie par une séquence de deux impulsions entre des termes spectraux distants de τ_c^{-1} . Dès lors la borne supérieure à la période de modulation dans la distribution de vitesse est λ/τ_c et non λ/τ_L . Le domaine des grands angles de diffusion s'ouvre alors à l'étude des changements de vitesse collisionnels en spectroscopie cohérente résolue dans le temps. On peut par ailleurs envisager l'étude par cette voie de processus inélastiques dont le défaut d'énergie important modifie profondément la distribution des vitesses atomiques.

Dans ce mémoire nous nous attachons à mettre en évidence l'excitation cohérente sur toute sa largeur \bar{v} d'une distribution de vitesse atomique caractérisée par :

$$\lambda/\tau_L \ll \bar{v} \ll \lambda/\tau_c$$

Ce faisant nous sommes confrontés à des effets de puissance que nous nous efforçons d'élucider.

La section II de ce mémoire présente un aperçu historique des méthodes de spectroscopie cohérente en établissant une filiation avec la Résonance Magnétique Nucléaire. Dans cette section nous examinons ensuite en détail le mécanisme de formation du signal d'écho de photon dans l'hypothèse simple d'excitation instantanée. La section III abandonne l'hypothèse d'excitation instantanée et examine la formation d'un signal d'écho stimulé par une séquence d'impulsions de lumière incohérente, dans la limite des champs faibles. La section IV envisage l'excitation en bande large par des impulsions intenses. On est ainsi conduit à rechercher la solution de l'équation de Bloch à coefficients aléatoires. Les solutions approchées ainsi obtenues sont utilisées dans la section V pour le calcul du signal d'écho de photon stimulé. La section VI est consacrée à la description du montage expérimental. Les résultats expérimentaux sont exposés et discutés dans la section VII .

II. SPECTROSCOPIE COHERENTE RESOLUE DANS LE TEMPS

SECTION II

SPECTROSCOPIE COHERENTE RESOLUE DANS LE TEMPS

II.1. HISTORIQUE

II.1.1. INTRODUCTION

Les transitoires cohérents produits par excitation laser sont considérés comme la transposition, dans le domaine optique, de processus observés en résonance magnétique nucléaire. Une analogie s'établit entre l'excitation lumineuse d'une transition atomique et la précession d'un moment magnétique dans un champ magnétique. Dans ce paragraphe nous examinons quelques notions mises en oeuvre dans les expériences de résonance magnétique nucléaire. Etendues ensuite aux expériences de transitoires optiques cohérents, ces notions illustrent la filiation qui, de l'expérience de Stern et Gerlach et de la mesure des spins nucléaires, conduit au phénomène d'écho de photon par l'intermédiaire des travaux de Rabi, Ramsey et Hahn.

II.1.2. RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE SUR DES JETS ATOMIQUES

Dans l'expérience de Stern et Gerlach, un jet atomique ou moléculaire paramagnétique traverse un champ magnétique inhomogène perpendiculaire à la direction du jet. Le jet d'atomes de moment cinétique interne $\hbar J$ est décomposé en $2J+1$ composantes par le champ. La valeur du moment magnétique est déduite de la mesure des déflexions produites. Dans l'expérience de Rabi [8] le champ magnétique inhomogène, dirigé suivant l'axe Oz , établit un lien entre la direction de la vitesse atomique et la composante du moment magnétique

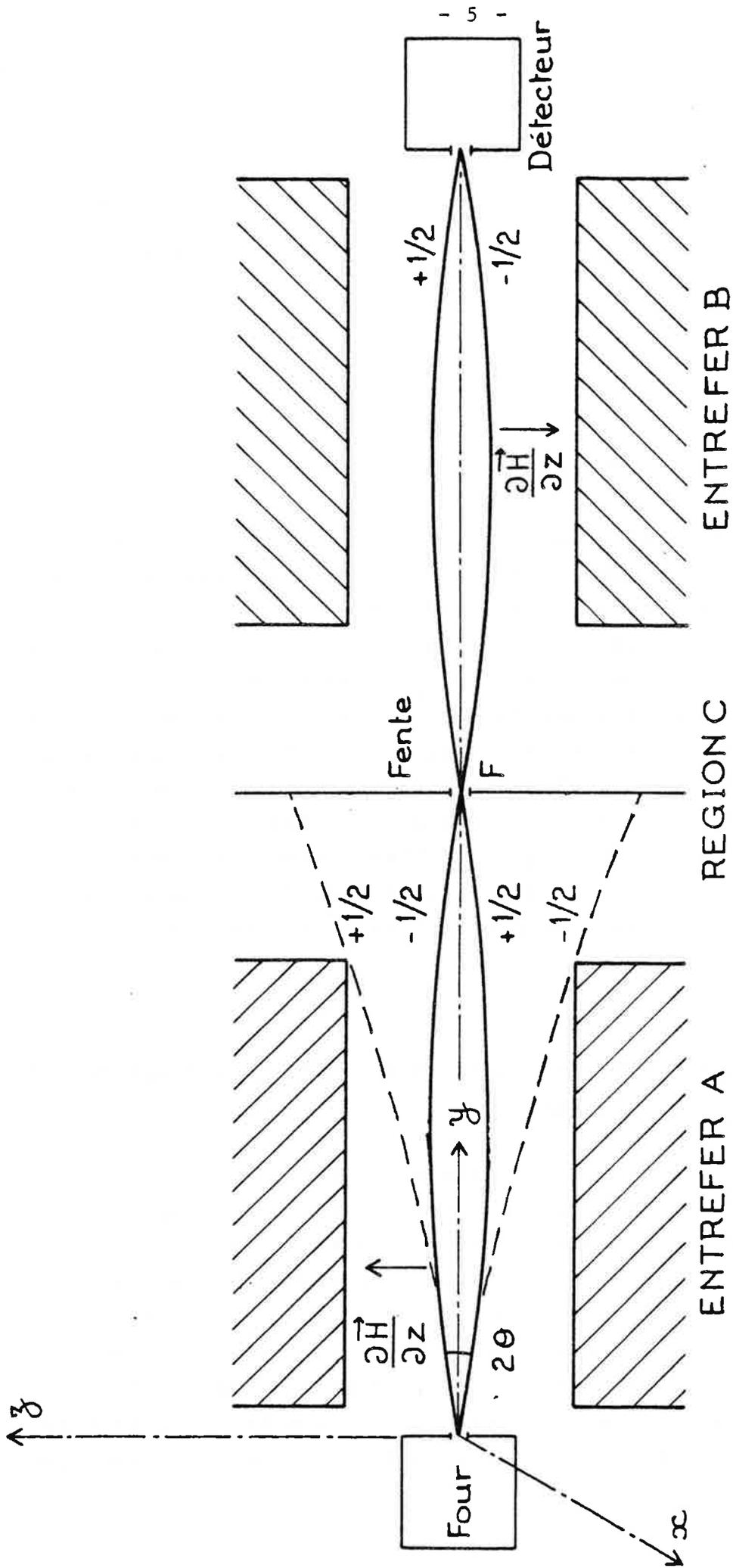


Figure II.1

le long de Oz , appelée composante longitudinale. Le jet atomique possède à la sortie du four une certaine ouverture angulaire. Les atomes issus du four dans la direction θ (figure II.1) par rapport à l'axe Oy sont distribués uniformément sur les $2J+1$ valeurs de la composante longitudinale du moment magnétique. Le jet traverse une première région de champ inhomogène A qui disperse en $2J+1$ composantes le jet élémentaire émis dans la direction θ . Seules certaines de ces composantes traversent le collimateur placé en F. Sur la figure II.1 la fente F est traversée par les atomes de moment longitudinal $-1/2$ émis dans la direction θ et par les atomes de moment longitudinal $+1/2$ émis dans la direction $-\theta$. Les atomes sélectionnés par la fente F rencontrent une seconde région de champ inhomogène B, symétrique de A par rapport à F dans laquelle ils subissent une déflexion égale et opposée à celle subie dans A. Les atomes sélectionnés par F atteignent le détecteur D pourvu que la composante longitudinale de leur moment magnétique ne soit pas modifiée avant leur entrée dans l'entrefer B. Cet ensemble constitue donc un détecteur de variation de la composante longitudinale du moment magnétique.

Dans l'expérience de Rabi, la région C comprise entre A et B est soumise à un champ uniforme H_0 , dirigé suivant Oz . Une cavité radiofréquence y est placée. Les atomes subissent en la traversant une variation de la composante longitudinale de leur moment magnétique. L'étude du mouvement classique d'un moment magnétique dans un champ précise la description du phénomène. Un moment magnétique \vec{S} placé dans un champ homogène \vec{H} est soumis à un couple $\vec{C} = \vec{S} \wedge \vec{H}$. L'équation fondamentale de la dynamique classique s'écrit alors :

$$\frac{d\vec{S}}{dt} = \gamma \vec{S} \wedge \vec{H} \quad (\text{II.1})$$

où γ représente le rapport gyromagnétique qui relie le moment cinétique $\vec{\sigma}$ au moment magnétique \vec{S} : $\vec{S} = \gamma \vec{\sigma}$. Dans le référentiel tournant à la fréquence $\vec{\omega}$, l'équation (II.1) devient :

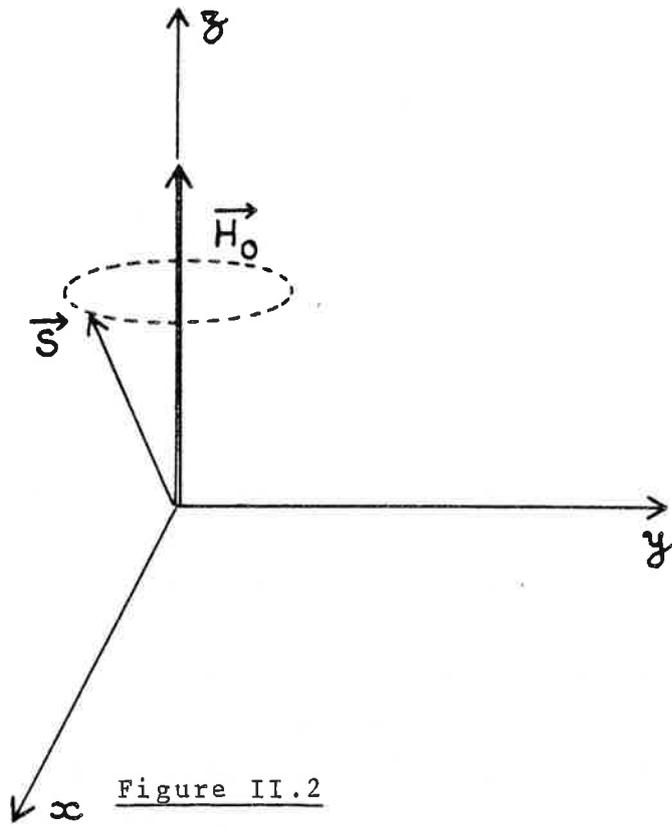


Figure II.2

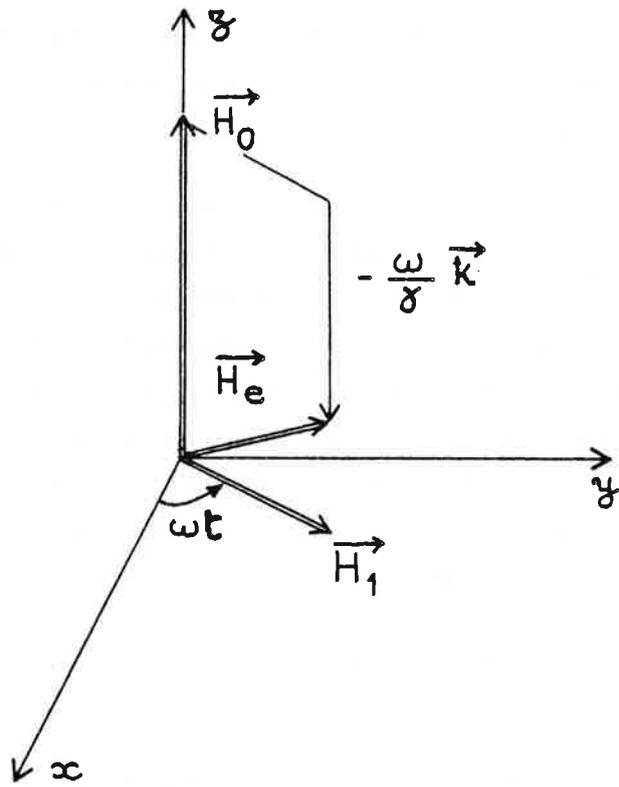


Figure II.3

$$\frac{d\vec{S}}{dt} = \gamma \vec{S} \wedge \left(\vec{H} + \frac{\vec{\omega}}{\gamma} \right) \quad (\text{II.2})$$

Deux cas particuliers nous seront utiles :

a) $\vec{H} = H_0 \vec{k}$ où H_0 est constant. Dans le référentiel tournant à la fréquence $\omega_0 = -\gamma H_0$ le moment magnétique \vec{S} est une constante. Dans le référentiel au repos, \vec{S} tourne autour de H à la fréquence de Larmor ω_0 (figure II.2).

b) \vec{H} est la somme de deux champs perpendiculaires \vec{H}_0 et \vec{H}_1 . \vec{H}_0 est constant, \vec{H}_1 est un champ tournant à la fréquence ω . Dans le référentiel tournant avec \vec{H}_1 , l'évolution de \vec{S} se traduit par une précession autour de $\vec{H}_e = \frac{1}{\gamma} (\omega_0 - \omega) \vec{k} + \vec{H}_1$ (figure II.3) à la fréquence γH_e .

La cavité RF située dans la région C de l'expérience de Rabi produit un champ \vec{H}_1 tournant à la vitesse ω dans le plan xOy. Le moment magnétique accomplit, autour du champ \vec{H}_e défini plus haut, une précession d'angle :

$$\phi = \tau \left[(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2 H_1^2 \right]^{1/2} \quad (\text{II.3})$$

où la durée τ d'interaction avec H_1 est le rapport de la longueur l et de la vitesse atomique v . Si S_z^i est la composante longitudinale du moment magnétique avant l'entrée dans la région C, sa valeur à la sortie de C est :

$$S_z^f = \frac{S_z^i}{\left[(\gamma H_1)^2 + (\omega_0 - \omega)^2 \right]} \left[(\omega_0 - \omega)^2 + (\gamma H_1)^2 \cos \phi \right] \quad (\text{II.4})$$

En fixant $\gamma H_1 \tau = (2n+1)\pi$, on réalise la variation maximale de S_z pour $\omega_0 = \omega$. La transmission du système est alors minimale. La variation du flux de particules recueillies en D en fonction de ω_0 fait apparaître une raie centrée en ω de largeur γH_1 [8]. La résolution pour la mesure de ω_0 est donnée par la largeur de raie γH_1 . Comme il faut que $\gamma H_1 \tau \approx (2n+1)\pi$ la limite de résolution est π/τ . Un traitement quantique du basculement des spins peut aussi être réalisé. Pour un spin 1/2 par exemple, la probabilité de transition s'écrit [8] :

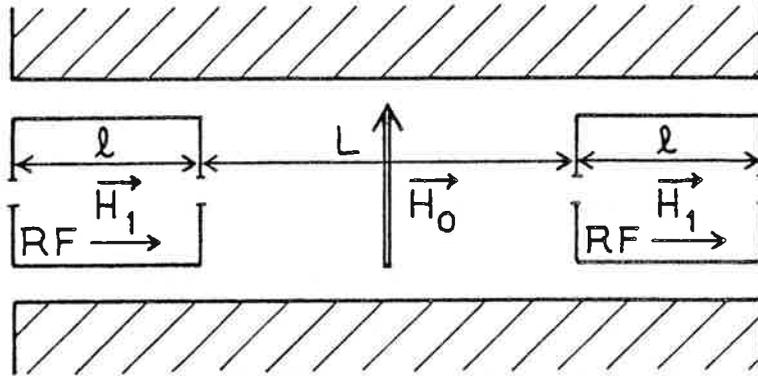


Figure II.4

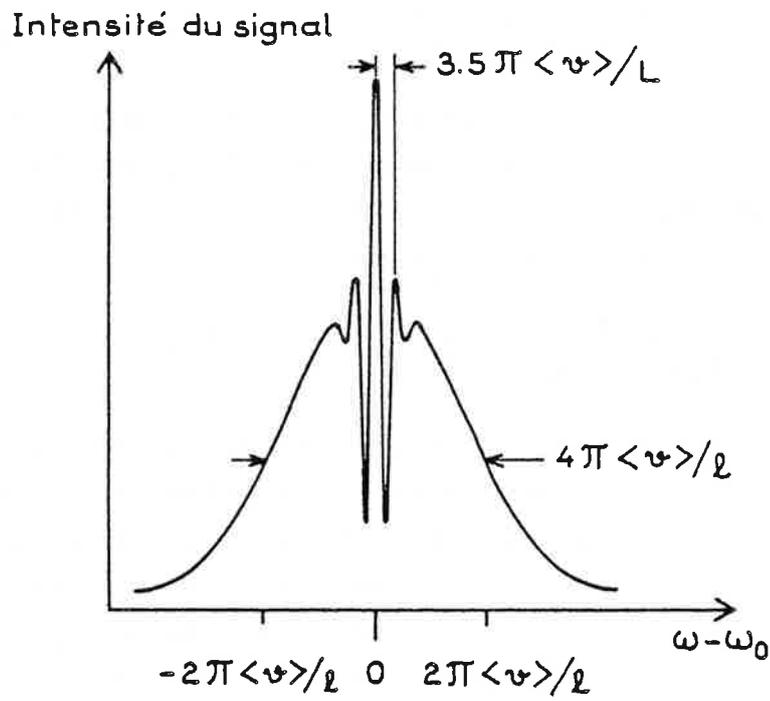


Figure II.5

$$P(1/2, -1/2) = \frac{(\gamma H_1)^2}{(\gamma H_1)^2 + (\omega_0 - \omega)^2} \sin^2\left(\frac{\phi}{2}\right) \quad (\text{II.5})$$

Ramsey améliore la précision de la mesure à l'aide d'une méthode de champs séparés [9]. Dans cette expérience le dispositif de détection de la variation de S_z est identique à celui de l'expérience de Rabi. En revanche la région C comporte un système de deux cavités radiofréquence immergées dans un champ homogène \vec{H}_0 (figure II.4). Supposons dans un premier temps que $(\omega - \omega_0)\tau \ll 1$. Dans cette hypothèse, lors de la traversée des cavités RF, la précession de \vec{S} se produit autour du champ effectif $\vec{H}_e \approx \vec{H}_1$, dans le référentiel tournant. Le passage à travers la première cavité fait donc varier la composante longitudinale S_z de S_z^i à $S_z^f = S_z^i \cos \gamma\tau H_1$. Par le choix de $\tau\gamma H_1 = \frac{\pi}{2}$ on obtient $S_z^f = 0$. On place ainsi le moment angulaire dans le plan transverse, c'est-à-dire perpendiculaire à \vec{H}_0 . A la sortie de la cavité le moment angulaire \vec{S} tourne à la fréquence de Larmor $\omega_0 = \gamma H_0$. Le jet atomique rencontre alors une seconde cavité radiofréquence située à la distance $L \gg \ell$ de la première. A l'entrée de cette seconde cavité il existe un angle entre le champ tournant \vec{H}_1 et le moment \vec{S} . En effet le champ \vec{H}_1 tourne à la fréquence ω et le moment magnétique à la fréquence ω_0 . L'angle $\alpha = (\vec{H}_1, \vec{S})$ vaut donc $\alpha = \frac{\pi}{2} + \frac{L}{v} (\omega - \omega_0)$ à l'entrée de la seconde cavité (figure II.4). Dans la seconde cavité, \vec{S} tourne à nouveau de $\frac{\pi}{2}$ autour du champ effectif $\vec{H}_e \approx \vec{H}_1$. A la sortie de la seconde cavité - et donc de la région C - la composante longitudinale de \vec{S} vaut ainsi :

$$S_z = -S_z^i \sin \alpha = -S_z^i \cos \left[(\omega - \omega_0)L/v \right] \quad (\text{II.6})$$

En fonction de ω_0 , le signal recueilli par le détecteur D présente une structure sinusoïdale de période $2\pi v/L$ connue sous le nom de franges de Ramsey. L'hypothèse simplificatrice $(\omega - \omega_0)\tau \ll 1$ nous a conduit à examiner le phénomène près du centre de la raie, de largeur $\gamma H_1 \approx \pi/\tau$, obtenue dans l'expérience initiale de Rabi. C'est bien là, et là seulement, que les franges de Ramsey sont observables. En effet, le jet atomique n'est pas monocinétique et, loin du

centre de la raie, les franges sont brouillées par la combinaison des contributions apportées au signal par les différentes classes de vitesse. L'allure du signal attendu est représentée sur la figure II.5 où $\langle v \rangle$ désigne la vitesse quadratique moyenne. La frange centrale a son maximum en $\omega_0 = \omega$. La limite de résolution pour la mesure de ω_0 passe ainsi de $\pi v/\lambda$ dans l'expérience de Rabi à $\pi v/L$ dans l'expérience de Ramsey.

II.1.3. ECHOS DE SPIN

Les expériences de Rabi et de Ramsey réalisées sur jets atomiques se caractérisent par :

- la détection de la composante longitudinale du moment magnétique
- l'absence de phénomène de relaxation
- l'homogénéité du champ magnétique \vec{H}_0 .

Il faut renoncer à ces trois caractéristiques dans une expérience de R.M.N. en phase condensée liquide ou solide. Dans une telle expérience les moments magnétiques sont détectés par l'intermédiaire de l'énergie électromagnétique qu'ils émettent ou absorbent. La détection du rayonnement émis suppose l'excitation préalable de la composante transverse du moment magnétique car l'amplitude du champ électromagnétique émis par un moment magnétique en précession autour de Oz est proportionnelle à cette composante. Divers phénomènes détruisent ce rayonnement. Le retour à l'équilibre thermique conduit à l'alignement progressif des moments magnétiques le long de Oz suivant la loi de distribution $\exp \vec{H}_0 \vec{S} / kT$. Cette relaxation est caractérisée par le temps de relaxation spin-réseau T_1 . Par ailleurs un fort couplage entre moments angulaires résulte de leur proximité en phase condensée. Cette interaction a deux conséquences. Elle conduit d'abord à l'interruption de la précession par transfert d'énergie à un moment magnétique voisin en un temps T_2'' appelé temps de basculement mutuel spin-spin. Elle conduit aussi à

l'addition, au champ appliqué \vec{H}_0 , d'un champ local dû aux spins. Il en résulte une inhomogénéité spatiale du champ magnétique et une dépendance spatiale de la fréquence de Larmor. Le désaccord de fréquence entre les composantes transverses de \vec{S} en différents points de l'échantillon provoque l'annulation de la composante transverse totale. Cependant à la différence des relaxations spin-spin et spin-réseau cette relaxation inhomogène ne détruit pas la relation de phase entre les différentes composantes transverses. En effet, à l'instant t après leur excitation, les composantes transverses en \vec{r}_1 et \vec{r}_2 font un angle bien défini : $[\omega_0(\vec{r}_1) - \omega_0(\vec{r}_2)]t$. La relaxation inhomogène apparaît donc comme un phénomène réversible. Cette description de la relaxation inhomogène suppose constant le champ local établi en chaque point. En fait ce champ fluctue car l'orientation des spins qui le créent n'est pas constante. Ces fluctuations tendent à détruire la relation angulaire entre les composantes transverses situées en \vec{r}_1 et \vec{r}_2 . Le temps de relaxation T_2' caractérise l'effet combiné de ce phénomène et du basculement mutuel spin-spin.

Hahn [10] s'affranchit de la relaxation inhomogène dans une expérience d'étude de la relaxation dans les liquides en utilisant une séquence d'impulsions excitatrices radiofréquence. Dans un liquide, le champ local, rapidement fluctuant, ne participe pas à la relaxation inhomogène [10]. Dans l'expérience considérée, l'aimant utilisé est seul responsable de l'hétérogénéité spatiale du champ magnétique. Une première impulsion de durée τ telle que en tout point $(\omega_0(\vec{r}) - \omega)\tau \ll 1$, est appliquée à l'instant t_1 (figure II.6). Son amplitude H_1 est telle que $\gamma H_1 \tau \approx \frac{\pi}{2}$. Elle amène donc les moments magnétiques dans le plan transverse. Après son extinction les moments tournent dans le plan transverse du référentiel tournant à la vitesse angulaire $\omega_0(\vec{r}) - \omega$. Une deuxième impulsion de durée 2τ et d'amplitude H_1 est appliquée à l'instant t_2 tel que $t_2 - t_1 \gg \tau$. Cette impulsion fait tourner les composantes transverses d'un angle π au-

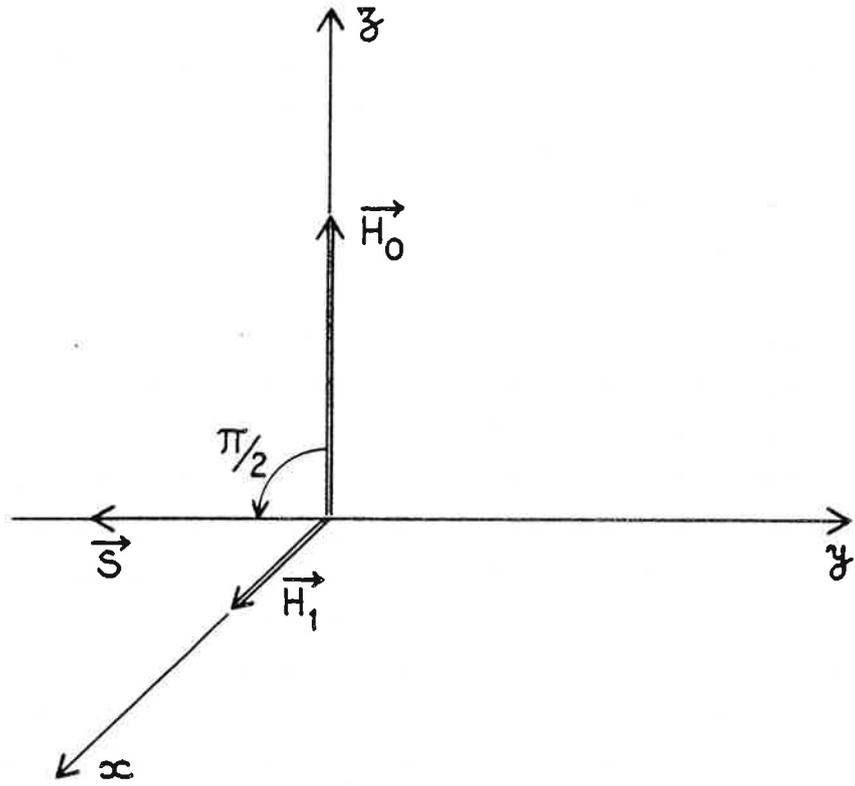


Figure II.6

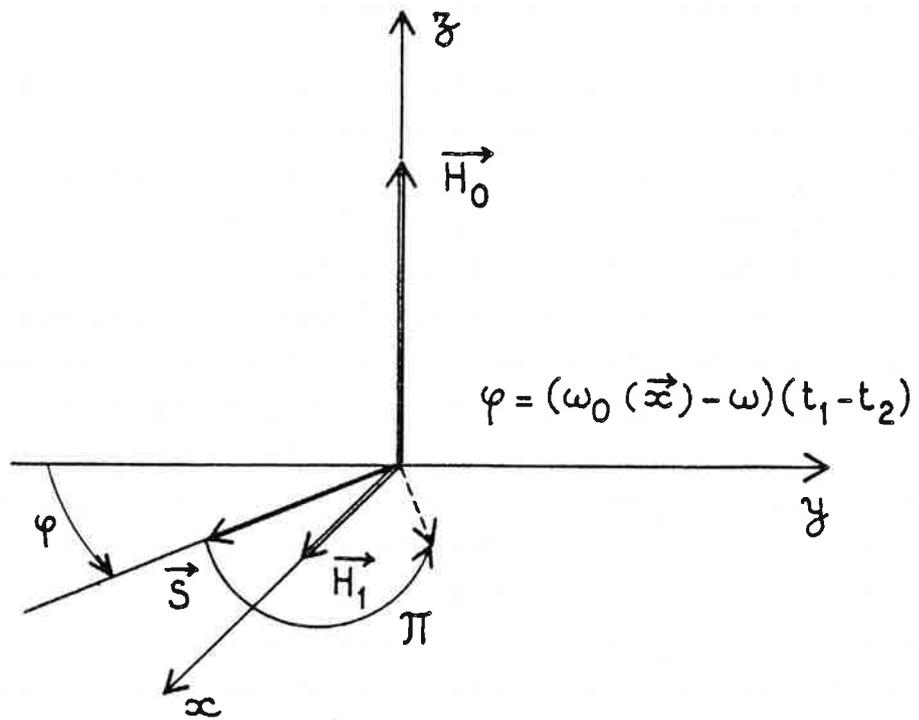


Figure II.7

tour de \vec{H}_1 dans le référentiel tournant (figure II.7). L'angle décrit par la composante transverse au point \vec{r} s'écrit après cette opération de symétrie : $(\omega_o(\vec{r}) - \omega)(t - 2t_2 + t_1) + \pi$. Toutes les composantes transverses sont donc alignées à l'instant $t = 2t_2 - t_1$. Un rayonnement radiofréquence est alors émis par l'échantillon. Il est appelé écho de spin. De la variation d'intensité du signal en fonction de l'intervalle $t_2 - t_1$ on déduit le taux de relaxation de la composante transverse du moment magnétique : $T_2^{-1} = T_1^{-1} + T_2'^{-1}$. L'échange d'énergie entre spins voisins par basculement mutuel est un phénomène résonnant qui requiert que les deux spins impliqués possèdent la même fréquence de Larmor [11]. Ce couplage se produit donc à l'intérieur d'un domaine où le champ magnétique statique est localement homogène. Cet échange ne modifie ni l'énergie totale des deux spins ni la composante longitudinale totale du point \vec{r} . Si on néglige les fluctuations de champ local la relaxation de la composante longitudinale est due seulement au couplage spin-réseau de temps caractéristique T_1 . Une expérience d'écho d'un autre type permet d'isoler la relaxation de cette composante. Deux impulsions radiofréquence identiques, séparées par un intervalle t_{12} et telles que $\gamma H_1 \tau \approx \pi/2$ sont appliquées à l'échantillon. Cette excitation est semblable à celle utilisée par Ramsey sur un jet atomique. A l'issue de cette séquence, la composante longitudinale au point \vec{r} est :

$$S_z(\vec{r}) = S_z^i(\vec{r}) \cos\left[(\omega - \omega_o(\vec{r}))t_{12}\right] \quad (\text{II.7})$$

Le temps L/v de parcours de l'intervalle entre cavités dans l'expérience de Ramsey (cf. éq. II.6) est remplacé par l'intervalle t_{12} entre impulsions. Les franges de Ramsey observées précédemment en fonction de H_o , se trouvent ici inscrites dans la distribution des spins en fonction du champ statique effectif $H_o(\vec{r})$ (figure II.8). Cette structure sinusoïdale s'efface avec un temps caractéristique T_1 en l'absence de fluctuations de champ local. A l'instant t_3 une troisième impulsion identique aux deux premières construit une composante transverse à partir de ce qui reste de la structure sinusoïdale dans la composante longitudina-

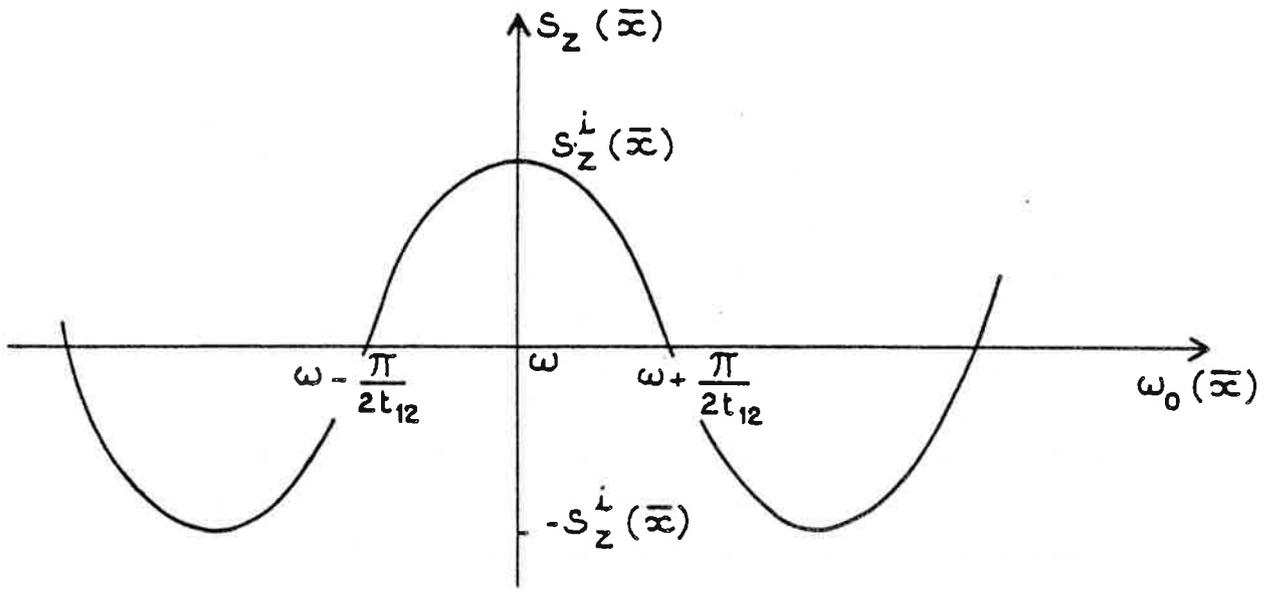


Figure II.8

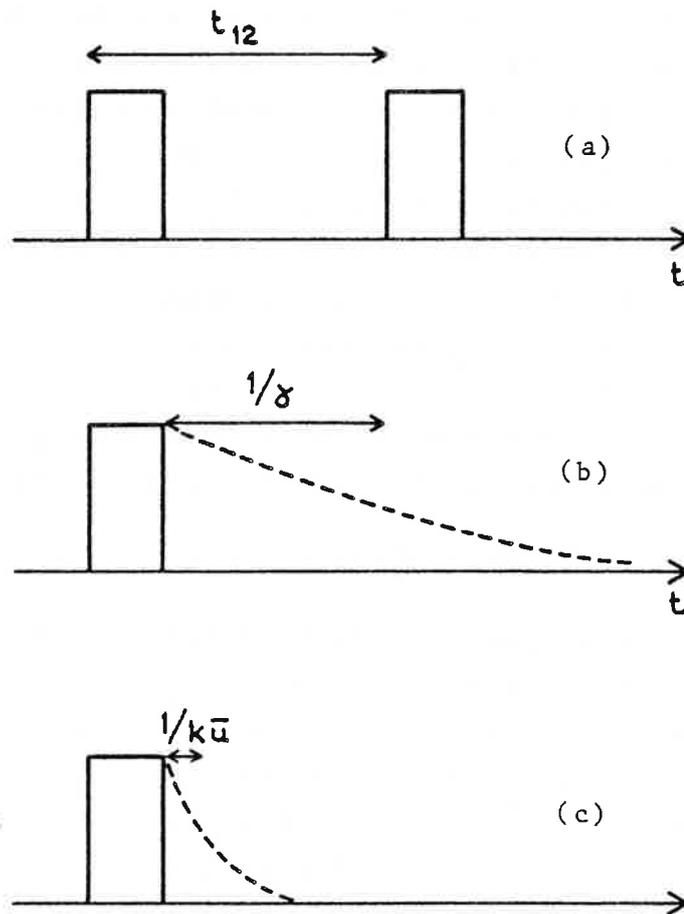


Figure II.9

le. Le réalignement des composantes transverses associées aux différentes fréquences de Larmor se produit à l'instant t_3+t_{12} et détermine l'émission d'un rayonnement radiofréquence appelé écho de spin stimulé. Le temps de relaxation T_1 est déterminé par l'étude de la variation de l'intensité du signal en fonction de l'intervalle t_3-t_2 .

II.1.4. ECHOS DE PHOTON

La transposition de ces mécanismes dans le domaine optique est inaugurée en 1964 par la première expérience d'écho de photon [12,13]. Un atome à deux niveaux, a et b, distants d'une énergie $\hbar\omega_{ab}$ et couplés par une transition dipolaire électrique, se comporte, après excitation lumineuse résonnante, comme un dipôle électrique rayonnant à la fréquence ω_{ab} . Lorsque tous les dipôles d'un échantillon oscillent à la même fréquence, la largeur de raie est liée à la durée de vie finie du dipôle. Elle est appelée largeur homogène. L'élargissement inhomogène apparaît lorsque les émetteurs ont des fréquences différentes. C'est le cas dans un échantillon solide où les niveaux atomiques sont déplacés par un environnement qui varie d'un site à l'autre (champ cristallin, impuretés...). La raie d'émission apparaît comme une combinaison de raies individuelles dont les centres sont déplacés les uns par rapport aux autres. On dit que la raie est élargie de manière inhomogène. Dans le cas des gaz auxquels on se limite par la suite, cet élargissement est dû au déplacement Doppler qui dépend de la vitesse axiale des atomes et varie donc d'une classe de vitesse à une autre. Au déplacement par effet Doppler de la fréquence d'émission correspond un déphasage Doppler entre les classes de vitesse. On considère des atomes qui ont une composante de vitesse v_z suivant la direction de propagation de la lumière laser et qui interagissent avec une séquence de deux impulsions (ω, \vec{k}) séparés par un intervalle de temps t_{12} très supérieur à leur durée (figure II.9.a). Lorsque tous

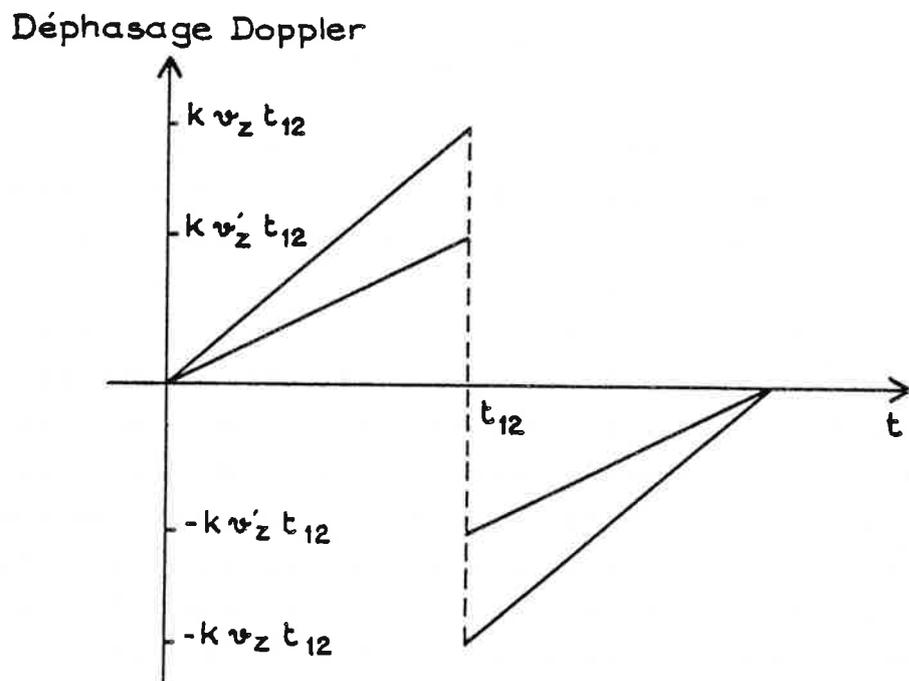


Figure II.10

les atomes de l'échantillon appartiennent à la même classe de vitesse $[v_z]$, un rayonnement dit de précession libre est émis dans la direction du faisceau laser, après extinction de la première impulsion, pendant un temps t de l'ordre de l'inverse de la largeur homogène $t \sim 1/\gamma$ (figure II.9.b). Lorsque les vitesses atomiques sont distribuées sur un domaine de largeur \bar{v} tel que $k\bar{v} \gg \gamma$, les dipôles se déphasent et leur rayonnement de précession libre s'éteint par interférence destructive au bout d'un temps $t \sim 1/k\bar{v}$ (figure II.9.c). La deuxième impulsion illumine l'échantillon au bout du temps t_{12} que nous supposons grand devant $1/k\bar{v}$ mais petit devant γ^{-1} . Pendant cet intervalle de temps, chaque classe de vitesse accumule un déphasage $kv_z t_{12}$ par rapport à la classe de vitesse nulle. La deuxième impulsion inverse le signe de la phase (figure II.10) qui continue ensuite à évoluer au cours du temps. La phase $[-kv_z t_{12} + kv_z(t-t_{12})]$ s'annule à $t = 2t_{12}$. Un rayonnement de précession libre est donc émis pendant l'intervalle de temps $\sim 1/k\bar{v}$ où les dipôles restent en phase. Ce signal est appelé écho de photon.

Dans le paragraphe suivant nous examinons en détail la formation de ce signal.

II.2. FORMATION DES ECHOS DE PHOTON DANS UN SYSTEME A DEUX NIVEAUX PAR DES IMPULSIONS COLINEAIRES

II.2.1. EXCITATION LASER D'UN SYSTEME ATOMIQUE A DEUX NIVEAUX

Dans ce paragraphe nous écrivons l'équation d'évolution d'un échantillon de gaz atomique excité à résonance par un laser et nous développons l'analogie avec la précession de Larmor d'un moment magnétique.

Nous considérons un échantillon de gaz formé de systèmes à deux niveaux non dégénérés a et b couplés par transition dipolaire électrique. Les grandeurs sensibles à l'excitation laser, telles que la densité atomique N_i du niveau i et la densité de polarisation P, sont directement reliées aux éléments de la matrice densité ρ :

$$\begin{aligned} N_i &= \rho_{ii} \\ P &= \text{Trace}(\mu\rho) \end{aligned} \quad (\text{II.8})$$

où μ est le moment dipolaire électrique. La densité de polarisation s'exprime en fonction des éléments non diagonaux de la matrice densité ($\mu_{ab} = 0$ pour $a = b$) qui sont caractéristiques de la superposition des états atomiques et qu'on désignera par cohérences optiques (atomiques). L'échantillon est éclairé par une onde laser, polarisée suivant x, qui se propage dans la direction z et dont le champ est décrit par :

$$E_x(z,t) = E(t) \cos(\omega t - kx + \varphi(t)) \quad (\text{II.9})$$

où $E(t)$ est réel. On suppose que l'échantillon est optiquement mince. Le champ perçu par les atomes coïncide alors avec le champ appliqué. L'évolution du système est décrite par l'équation de Schrödinger et la matrice densité ρ correspondante obéit à l'équation :

$$i\hbar\dot{\rho} + i\hbar\vec{v}\cdot\nabla\rho = [H,\rho] + \text{terme de relaxation} \quad (\text{II.10})$$

H est le hamiltonien total du système :

$$H = H_0 + H_{\text{int.}} \quad (\text{II.11})$$

H_0 est le hamiltonien du système en l'absence d'interaction avec le champ électromagnétique de l'onde laser.

$$\begin{aligned} \langle a|H_0|a\rangle &= \hbar\omega_a \\ \langle b|H_0|b\rangle &= \hbar\omega_b \\ E_b - E_a &= \hbar\omega_{ab} > 0 \end{aligned} \quad (\text{II.12})$$

Le terme d'interaction dans l'approximation dipolaire électrique s'écrit :

$$H_{\text{int.}} = -\mu_x E_x(z,t) \quad (\text{II.13})$$

Les éléments de matrice non nuls de μ_x sont :

$$\langle a | \mu_x | b \rangle = \mu_{ab} \quad (\text{II.14})$$

Les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont choisis de telle sorte que μ_{ab} soit réel. La relaxation est décrite de façon phénoménologique par des taux de décroissance. Le taux de relaxation de la cohérence est γ_{ab} . Dans un système à deux niveaux fermé le dépeuplement du niveau b, caractérisé par le taux γ_b , s'accompagne du peuplement du niveau a au même taux. L'équation (II.10) s'écrit donc :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{aa} + \vec{v}\vec{\nabla}\rho_{aa} &= i\hat{\chi}(\rho_{ba} - \rho_{ab}) \cos(\omega t - kz + \varphi(t)) + \gamma_b \rho_{bb} \\ \dot{\rho}_{bb} + \vec{v}\vec{\nabla}\rho_{bb} &= i\hat{\chi}(\rho_{ab} - \rho_{ba}) \cos(\omega t - kz + \varphi(t)) - \gamma_b \rho_{bb} \\ \dot{\rho}_{ab} + \vec{v}\vec{\nabla}\rho_{ab} &= i\hat{\chi}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \cos(\omega t - kz + \varphi(t)) + (i\omega_{ab} - \gamma_{ab})\rho_{ab} \end{aligned} \quad (\text{II.15})$$

où $\hat{\chi}(t) = \mu_{ab} E(t) / \hbar$.

Les équations (II.15) prennent une forme simplifiée en utilisant l'approximation des ondes tournantes qui consiste à remplacer ρ_{ab} par $\tilde{\rho}_{ab} \exp(i(\omega t - kz))$ et à négliger les termes non résonnants, ce qui revient à éliminer les termes qui oscillent rapidement. Pour les atomes de vitesse v_z (classe de vitesse v_z) le système différentiel s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{aa} &= \frac{i}{2} [\chi \tilde{\rho}_{ba} - \chi^* \tilde{\rho}_{ab}] + \gamma_b \rho_{bb} \\ \dot{\rho}_{bb} &= -\dot{\rho}_{aa} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ab} &= \frac{i}{2} \chi [\rho_{bb} - \rho_{aa}] + i\Delta \tilde{\rho}_{ab} - \gamma_{ab} \tilde{\rho}_{ab} \end{aligned} \quad (\text{II.16})$$

où $\Delta = -\omega + \omega_{ab} + \vec{k}\vec{v}$ et $\chi = \frac{\mu_{ab}}{\hbar} E(t) e^{i\varphi(t)}$. On reconnaît dans $\vec{k}\vec{v}$ le terme de déplacement Doppler.

En réalisant les substitutions suivantes :

$$\begin{aligned} u &= \tilde{\rho}_{ab} + \tilde{\rho}_{ba} \\ v &= i(\tilde{\rho}_{ba} - \tilde{\rho}_{ab}) \\ w &= \rho_{bb} - \rho_{aa} \end{aligned} \quad (\text{II.17})$$

on obtient les équations de Bloch optiques :

$$\begin{cases} \dot{u} = \frac{i}{2}(\chi - \chi^*)w - \Delta v - \gamma_{ab} u \\ \dot{v} = \frac{1}{2}(\chi + \chi^*)w + \Delta u - \gamma_{ab} v \\ \dot{w} = -\frac{1}{2}(\chi + \chi^*)v - \gamma_b(w - w^0) - \frac{i}{2}(\chi - \chi^*)u \end{cases} \quad (\text{II.18})$$

où $-w^0$ est la population du niveau a en l'absence d'excitation. En l'absence de relaxation l'équation (II.18) se réduit à un système différentiel homogène qui s'écrit :

$$\frac{d\vec{B}}{dt} = \vec{\beta} \wedge \vec{B} \quad (\text{II.19})$$

où $\vec{B} = [u, v, w]$ et $\vec{\beta} = [-|\chi| \cos \varphi, -|\chi| \sin \varphi, \Delta]$

Le vecteur de Bloch \vec{B} effectue autour de $\vec{\beta}$ un mouvement analogue à la précession de Larmor d'un dipôle magnétique dans un champ magnétique. La transformation $\rho_{ab} = \tilde{\rho}_{ab} \exp(i(\omega t - kz))$ effectuée plus haut nous place d'emblée dans un référentiel de Bloch tournant analogue au référentiel tournant envisagé dans le cas de la résonance magnétique. La résolution des équations de Bloch dans le cas général est compliquée par le fait que la direction du vecteur $\vec{\beta}$ autour duquel s'accomplit la précession dépend de l'amplitude du champ et du désaccord de fréquence entre le champ et l'atome. Durant l'impulsion laser la direction de ce vecteur évolue ; d'abord dirigée suivant l'axe OZ, elle s'incline vers l'axe $(-\cos \varphi, -\sin \varphi)$ dans le plan XOY à mesure que l'amplitude du champ augmente puis elle se redresse le long de l'axe OZ tandis que l'impulsion s'éteint. Par ailleurs, le terme non homogène $\gamma_b w^0$ ajoute une difficulté supplémentaire dans le cas où la relaxation doit être prise en compte. Les chapitres III et IV de ce mémoire examinent plus précisément le problème posé par la résolution de l'équation (II.19). Dès maintenant nous notons quelques situations limites où l'équation (II.18) est soluble. Dans ces exemples l'échantillon est irradié par une impulsion lumineuse de durée τ_L et la largeur Doppler est désignée par $\omega_D = k\bar{v}$.

a) $\gamma_b \tau_L \ll 1$, $\omega_D \tau_L \ll 1$, φ est constante. La rotation du vecteur de Bloch autour de OZ pendant la durée de l'impulsion est alors imperceptible. En d'autres termes le dépha-

sage qui se construit entre le champ et les dipôles en raison du désaccord de fréquence est négligeable. Le mouvement de \vec{B} se réduit à une précession de vitesse angulaire $\chi(t)$ autour de l'axe fixe $(-\cos \varphi, -\sin \varphi, 0)$.

b) $\gamma_b \tau_L \ll 1$, φ est constante et $\chi(t)$ est une fonction rectangulaire du temps dont les bords sont abrupts. Le mouvement du vecteur de Bloch se réduit à une rotation à la vitesse $(\chi^2 + \Delta^2)^{1/2}$ autour de l'axe fixe $(-|\chi| \cos \varphi, -|\chi| \sin \varphi, \Delta)$.

c) $\gamma_b \tau_L \ll 1$, $|\theta|^2 \ll 1$ où $\theta = \int \chi(t) dt$ est l'aire de l'impulsion. Cette hypothèse de champ faible autorise la résolution perturbative de l'équation du mouvement.

Les caractéristiques principales de la formation d'un transitoire cohérent dépendent peu des conditions précises d'excitation. Aussi examinerons nous dans ce chapitre la formation de ces transitoires dans la limite a).

II.2.2. RAYONNEMENT DE PRECESSION LIBRE

Nous considérons l'excitation à résonance d'une vapeur atomique par une impulsion de durée τ_L telle que $\omega_D \tau_L \ll 1$. La phase φ du champ est supposée constante. Sans perte de généralité nous posons $\varphi = 0$. Par ailleurs nous ignorons tous les processus de relaxation homogène dont les taux γ_{ij} sont supposés très inférieurs à l'inverse de tous les temps caractéristiques du problème. Le vecteur de Bloch initial, avant irradiation laser, est :

$$B(v_z, 0) = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ -nW(v_z) \end{bmatrix} \quad (\text{II.20})$$

où n est la densité atomique et $W(v_z)$ est la fonction de distribution de vitesse atomique à l'équilibre thermodynamique dans la direction du faisceau lumineux. L'impulsion lumineuse fait tourner le vecteur de Bloch d'un angle

$\theta = \int_{-\infty}^{+\infty} dt X(t)$ autour de l'axe $-OX$ dans l'espace de Bloch.

A l'instant t_1 immédiatement ultérieur à l'extinction de l'impulsion excitatrice le vecteur de Bloch vaut :

$$B(v_z, t_1) = \begin{bmatrix} 0 \\ -nW(v_z) \sin \theta \\ -nW(v_z) \cos \theta \end{bmatrix} \quad (\text{II.21})$$

Au delà de l'instant t_1 le vecteur de Bloch accomplit un mouvement de précession autour de l'axe OZ à la vitesse angulaire kv_z . A l'instant t le vecteur de Bloch vaut :

$$B(v_z, t) = -nW(v_z) \begin{bmatrix} -\sin \phi \sin \theta \\ \cos \phi \sin \theta \\ \cos \theta \end{bmatrix} \quad (\text{II.22})$$

où $\phi = kv_z(t-t_1)$.

De même que les composantes transverses des moments magnétiques situés en différents points d'un échantillon soumis à un champ statique inhomogène se déphasent entre elles, de même le font les composantes transverses des vecteurs de Bloch optiques associés à différentes classes de vitesse axiale.

Une polarisation optique oscillante de densité $\vec{P} = \text{Tr } \vec{\mu} \rho$ naît de la composante transverse du vecteur de Bloch par l'intermédiaire des éléments non diagonaux de la matrice densité :

$$\rho_{ab}(z, v_z, t) = \frac{1}{2} \left(u(v_z, t) + iv(v_z, t) \right) \exp(i\omega t - kz) \quad (\text{II.23})$$

Les composantes de \vec{P} sont :

$$\begin{aligned} P_x(z, v_z, t) &= \mu_{ab} (\rho_{ab} + \rho_{ba}) \\ &= i \frac{n}{2} \mu_{ab} W(v_z) \sin \theta \exp(i\omega_{ab} t - kz + kv_z(t-t_1)) + \text{C.C.} \end{aligned} \quad (\text{II.24})$$

$$P_y(z, v_z, t) = P_z(z, v_z, t) = 0$$

Les dipôles rayonnent un champ électromagnétique. Le champ rayonné au point \vec{r}_0 par les dipôles situés au point \vec{r} est [14]:

$$\vec{E}(\vec{r}_0, \vec{r}, v_z, t) = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{k^2}{R} e^{-ikR} \left(\vec{n} \wedge \vec{P}(\vec{r}, v_z, t) \right) \wedge \vec{n} \quad (\text{II.25})$$

où $\vec{n} = \vec{R}/R$ et $\vec{R} = \vec{r}_0 - \vec{r}$. Dans la limite où la distance de l'échantillon à l'observateur est très supérieure à la dimension de l'échantillon, on remplace R par $r_0 + \frac{\vec{r}_0 \cdot \vec{r}}{r_0}$. On en déduit la relation suivante :

$$\vec{E}(\vec{r}_0, \vec{r}, v_z, t) = \exp ik \left(\vec{r} \cdot \frac{\vec{r}_0}{r_0} - z \right) \vec{E}(\vec{r}_0, 0, v_z, t) \quad (\text{II.26})$$

Le champ total rayonné est obtenu par sommation sur la zone active et sur la vitesse. Pour mener le calcul à son terme nous supposons que l'échantillon est un parallélépipède de longueur L le long de la direction du faisceau laser et de dimension transversale d . La direction d'observation \vec{r}_0/r_0 est définie par des cosinus directeurs (α, β, γ) . Après sommation sur le volume actif V on obtient :

$$\vec{E}(\vec{r}_0, v_z, t) = V f \left(k \frac{L}{2} (\gamma - 1) \right) f \left(k \frac{d}{2} \alpha \right) f \left(k \frac{d}{2} \beta \right) \vec{E}(\vec{r}_0, 0, v_z, t) \quad (\text{II.27})$$

où $f(x) = \sin x/x$. La sommation sur la vitesse axiale v_z conduit finalement à :

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}_0, t) = & \frac{\mu_0}{4\pi} \cdot \frac{iN}{2} \mu_{ab} \sin \theta \hat{W}(k(t-t_1)) f \left(k \frac{L}{2} (\gamma - 1) \right) f \left(k \frac{d}{2} \alpha \right) f \left(k \frac{d}{2} \beta \right) \times \\ & \times \exp i \left(\omega_{ab} t - \vec{k} \cdot \vec{r}_0 \right) + \text{C.C.} \end{aligned} \quad (\text{II.28})$$

où $\hat{W}(k(t-t_1)) = \int_{-\infty}^{+\infty} W(v_z) \exp ikv_z(t-t_1) dv_z$ et où N est le nombre total d'atomes excités. Dans l'équation (II.28) le comportement temporel du champ rayonné est décrit par la fonction $\hat{W}(k(t-t_1))$. Elle indique que ce rayonnement, appelé rayonnement de précession libre, s'éteint au bout d'un temps de l'ordre de ω_D^{-1} . La direction d'émission est précisée par le produit $f \left(k \frac{L}{2} (\gamma - 1) \right) \times f(kd\alpha/2) \times f(kd\beta/2)$. L'émission dans la direction d'angle θ par rapport à la direction du faisceau laser et à l'azimut φ est caractérisé par les cosinus directeurs :

$$\alpha = \sin \theta \cos \varphi ; \beta = \sin \theta \sin \varphi ; \gamma = \cos \theta$$

La fonction $f(x)$ est centrée en 0 et sa largeur est de l'ordre de 2π . Comme les dimensions du volume actif sont très supérieures à la longueur d'onde, la direction d'émission du rayonnement de précession libre est confinée à un angle

solide tel que $\gamma-1, \alpha, \beta \ll 1$. L'ouverture θ de cet angle solide est donc très inférieure à l'unité. Plus précisément :

$$f(k(\gamma-1)L/2) \times f(kd\alpha/2) \times f(kd\beta/2) \approx f\left(kL\frac{\theta^2}{4}\right) f(kd\theta\sin\varphi/2) f(kd\theta\cos\varphi/2) \quad (\text{II.29})$$

La dimension transverse fixe une ouverture angulaire :

$$\theta_t \approx \frac{2\pi}{kd} = \frac{\lambda}{d} \quad (\text{II.30})$$

Pour $\theta = \theta_t$ l'argument de $f\left(kL\frac{\theta^2}{4}\right)$ s'écrit :

$$kL\frac{\theta^2}{4} = \frac{\pi}{2} \frac{L\lambda}{d} \quad (\text{II.31})$$

Dans un montage typique ($L \approx 10$ cm, $d \approx 1$ mm, $\lambda \approx .5 \mu$) cette quantité est très inférieure à l'unité. Ainsi l'ouverture angulaire du rayonnement est-elle complètement fixée par la dimension transverse de l'échantillon. On reconnaît en fait dans la distribution angulaire du rayonnement celle de la diffraction d'une onde plane par une ouverture ajustée aux dimensions transverses du volume actif.

En conclusion, les dipôles créés par une impulsion laser émettent un rayonnement de précession libre dirigé suivant la direction de l'onde excitatrice et dont l'ouverture angulaire est limitée par diffraction. Bien que les dipôles soient toujours présents dans la vapeur, leur rayonnement s'éteint par interférence au bout d'un temps de l'ordre de ω_D^{-1} . Une relation de phase subsiste cependant entre tous les dipôles. Les échos de photon révèlent cet ordre caché [15].

II.2.3. ECHO DE PHOTON

Comme les échos de spin, les échos de photon mettent en évidence la réversibilité du déphasage inhomogène. Le signal d'écho de photon est obtenu par l'application d'une seconde impulsion laser à une assemblée de dipôles optiques formés par une première impulsion, après extinction de leur rayonnement de précession libre.

La représentation du vecteur de Bloch illustre bien ce mécanisme de remise en phase lorsque les aires

$\theta_i = \int_{-\infty}^{+\infty} \chi_i(t) dt$ des deux impulsions successives sont respectivement $\theta_1 = \frac{\pi}{2}$, $\theta_2 = \pi$. Les vecteurs de Bloch associés aux différentes classes de vitesse axiale v_z sont amenés dans le plan transverse par la première impulsion à l'instant t_1 (figure II.11). Ils se décalent par rapport au vecteur de Bloch associé à la classe de vitesse nulle, à la vitesse angulaire kv_z . A l'instant t l'angle décrit dans le plan transverse par rapport à la position initiale commune est $kv_z(t-t_1)$ (figure II.12). La deuxième impulsion appliquée à l'instant t_2 ramène les vecteurs de Bloch dans le plan transverse après une rotation de $-\pi$ autour de l'axe OX. Au terme de cette rotation, la position angulaire du vecteur de Bloch par rapport à la position initiale commune est : $kv_z(t_1-t_2) + \pi$ (figure II.13). A un instant t ultérieur, la précession dans le plan transverse amène le vecteur de Bloch à la position $kv_z(t-2t_2+t_1) + \pi$. Les vecteurs de Bloch associés à toutes les classes de vitesse se retrouvent donc alignés à l'instant $t = 2t_2-t_1$ (figure II.14). La relaxation inhomogène ayant été éliminée, l'échantillon émet alors un rayonnement de précession libre analogue à celui dont nous avons dégagé les caractéristiques dans le paragraphe précédent :

- il est émis à la fréquence de la transition atomique
- il est dirigé suivant l'axe de propagation des impulsions excitatrices
- sa durée est de l'ordre de $(k\bar{v})^{-1}$.

Nous déterminons plus précisément l'évolution d'un échantillon soumis à une séquence de deux impulsions laser séparées dans le temps en retenant les hypothèses définies dans le paragraphe précédent : l'excitation est produite à résonance ($\omega = \omega_{ab}$), la durée τ_L des impulsions vérifie $\omega_D \tau_L \ll 1$. Nous supposons en outre que les deux impulsions se propagent dans le même sens et qu'elles sont en phase.

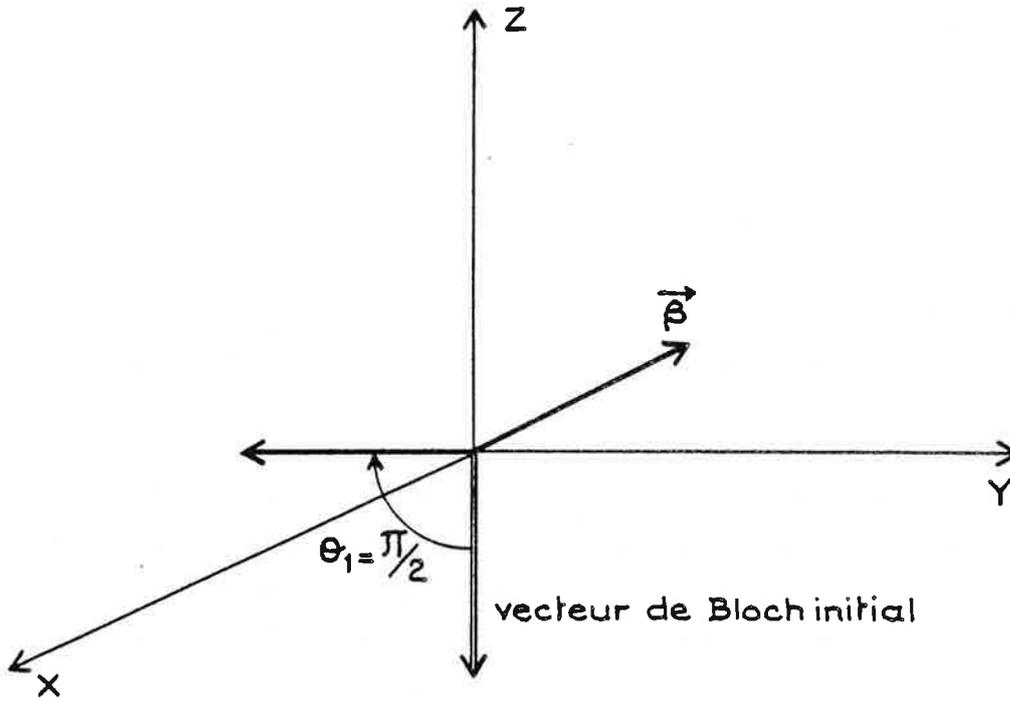


Figure II.11

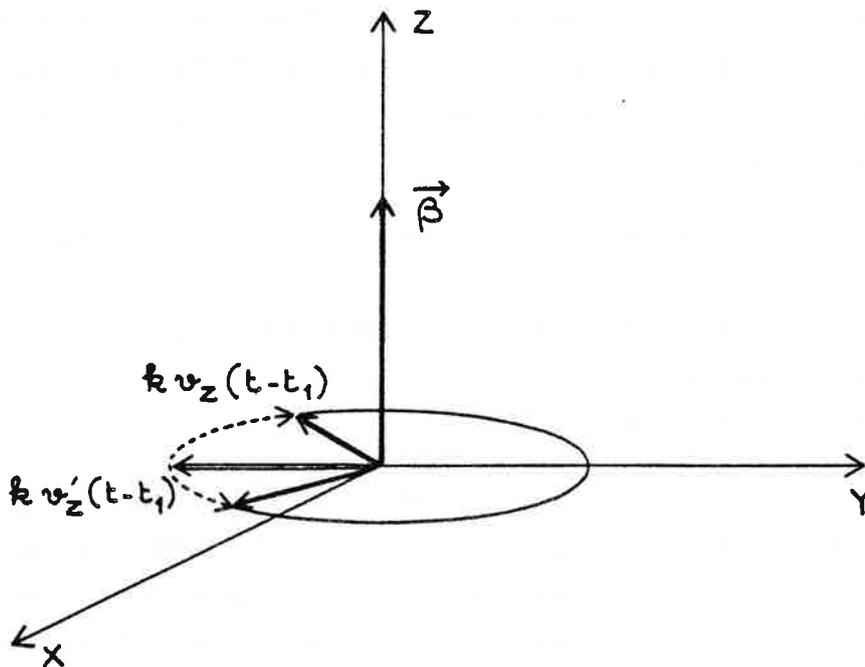


Figure II.12

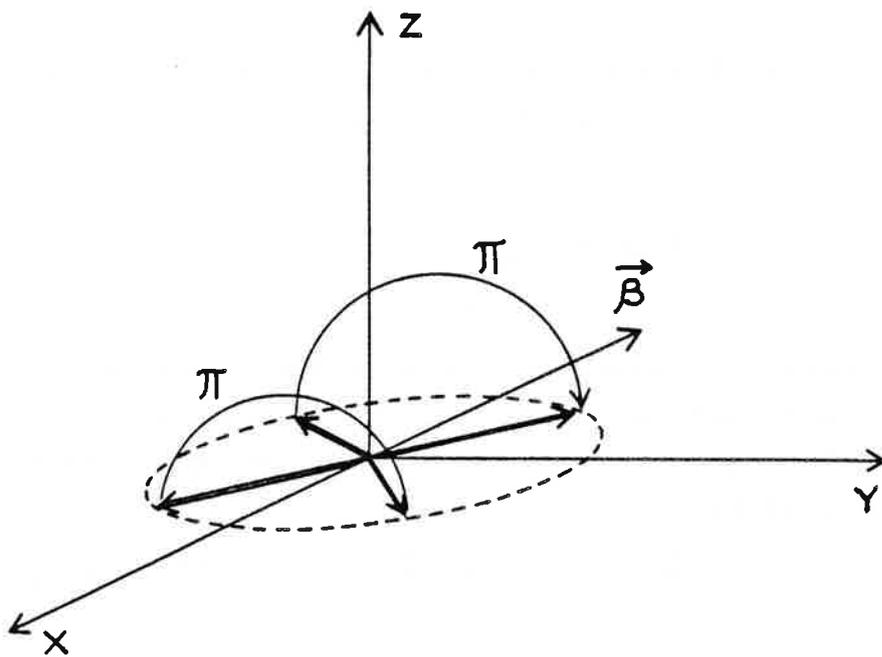


Figure II.13

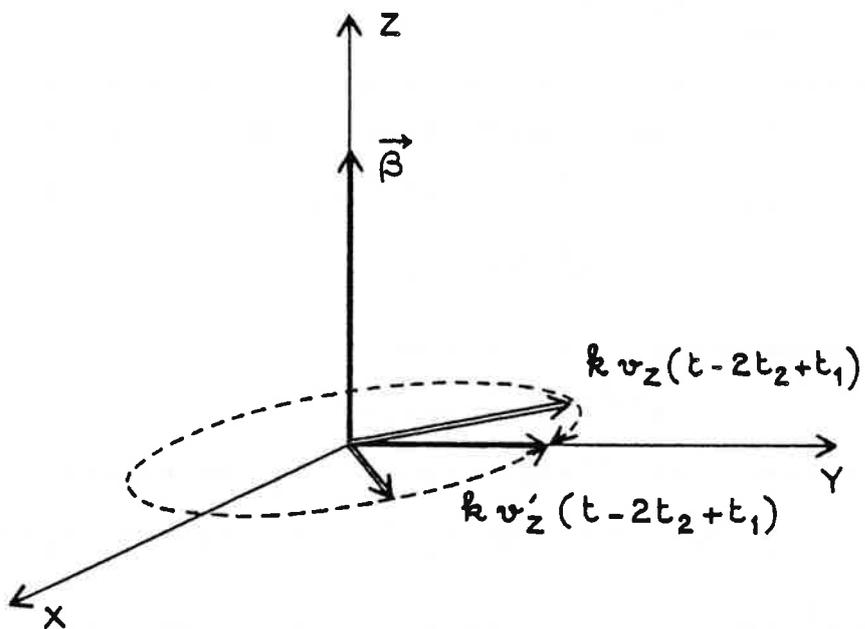


Figure II.14

Par commodité nous abandonnons la représentation du vecteur de Bloch et nous définissons le vecteur :

$$\vec{A}(t) = \begin{pmatrix} \tilde{\rho}_{ab}(t) \\ \tilde{\rho}_{ba}(t) \\ w(t) \end{pmatrix} \quad (\text{II.32})$$

A l'instant t compris entre la i -ème et la $i+1$ -ème impulsion, le vecteur $\vec{A}(t)$ s'exprime en fonction de sa valeur à l'instant t_i^- immédiatement antérieur à la i -ème impulsion par l'expression suivante :

$$\vec{A}(t) = \tilde{\rho}_{ab}(t_i^-)\vec{\alpha}_i + \tilde{\rho}_{ba}(t_i^-)\vec{\beta}_i + w(t_i^-)\vec{\gamma}_i \quad (\text{II.33})$$

où

$$\vec{\alpha}_i = \begin{bmatrix} a_i^2 e^{+i\varphi_i} \\ b_i^2 e^{-i\varphi_i} \\ 2ia_i b_i \end{bmatrix}; \quad \vec{\beta}_i = \begin{bmatrix} b_i^2 e^{+i\varphi_i} \\ a_i^2 e^{-i\varphi_i} \\ -2ia_i b_i \end{bmatrix}; \quad \vec{\gamma}_i = \begin{bmatrix} ia_i b_i e^{+i\varphi_i} \\ -ia_i b_i e^{-i\varphi_i} \\ 2a_i^2 - 1 \end{bmatrix}$$

$$\text{où } \theta_i = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \chi_i(t), \quad \varphi_i(t) = kv_z(t-t_i), \quad a_i = \cos \frac{\theta_i}{2}, \quad b_i = \sin \frac{\theta_i}{2}$$

On désigne par $A^{(j)}(t)$ la j -ème composante du vecteur $\vec{A}(t)$. A l'instant t après la deuxième impulsion on a :

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{ab}(t) = A^{(1)}(t) &= A^{(1)}(t_2^-)\alpha_2^{(1)} + A^{(2)}(t_2^-)\beta_2^{(1)} + \\ &+ A^{(3)}(t_2^-)\gamma_2^{(1)} \end{aligned} \quad (\text{II.34})$$

Les composantes de $\vec{A}(t_2^-)$ sont :

$$A^{(j)}(t_2^-) = w(t_1^-)\gamma_1^{(j)} \quad (\text{II.35})$$

Substituant dans l'expression de $\tilde{\rho}_{ab}$ on obtient :

$$\begin{aligned} \rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) &= -inW(v_z) \left\{ a_1 b_1 a_2^2 \exp+i(\varphi_1(t_2) + \varphi_2(t)) \right\} \\ &- a_1 b_1 b_2^2 \exp-i(\varphi_1(t_2) - \varphi_2(t)) + a_2 b_2 (2a_1^2 - 1) \exp+i(\varphi_2(t)) \left\} \times \\ &\times \exp i(\omega t - \vec{k}\vec{r}) \end{aligned} \quad (\text{II.36})$$

L'intégration sur la vitesse conduit finalement à :

$$\rho_{ab}(\vec{r}, t) = -in \left\{ a_1 b_1 a_2^2 \hat{W}(k(t-t_1)) - a_1 b_1 b_2^2 \hat{W}(k(t-2t_2+t_1)) + a_2 b_2 (2a_1^2 - 1) \hat{W}[k(t-t_2)] \right\} \exp i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r}) \quad (\text{II.37})$$

De cet élément non diagonal de la matrice densité naît un rayonnement de précession libre composé de trois signaux successifs associés aux trois termes qui apparaissent dans l'expression de $\rho_{ab}(\vec{r}, t)$. La durée de chaque signal, fixée par la largeur de la fonction $\hat{W}(x)$, est de l'ordre de $1/k\bar{v}$. Ils sont centrés respectivement en t_1 , $2t_2 - t_1$ et t_2 (figure II.15). On reconnaît dans les composantes centrées en t_1 et t_2 les rayonnements de précession libre, synchrones des impulsions, qui sont discutés dans le paragraphe précédent. La composante centrée en $2t_2 - t_1$ est l'écho de photon. Comme prévu son amplitude est maximale lorsque $\theta_1 = \frac{\pi}{2}$ et $\theta_2 = \pi$. On note que le signal ne dépend pas de la forme des impulsions excitatrices mais seulement de leur aire. Les expressions (II.34, 35) indiquent que l'écho provient du terme $\beta_2^{(1)} \gamma_1^{(2)} w(t_1^-)$, c'est-à-dire qu'il résulte de la formation, par la deuxième impulsion, d'une cohérence $\tilde{\rho}_{ab}$ à partir d'une cohérence $\tilde{\rho}_{ba}$ produite par la première impulsion. Ainsi les populations des niveaux ne sont impliquées dans la formation de l'écho de photon que pendant la durée des impulsions excitatrices. Pourvu que cette durée soit très inférieure à l'intervalle t_{12} entre les impulsions, l'intensité du signal n'est affectée que par la relaxation des seules cohérences agissant pendant l'intervalle $2t_{12}$ qui sépare la première impulsion de l'écho. La relaxation inhomogène étant éliminée par le mécanisme même de formation de l'écho, on distingue dans un gaz :

- la relaxation par émission spontanée. Elle est caractérisée par le taux γ_{ab} qui représente la largeur naturelle de la raie a-b ;

- la relaxation par collision élastique. Au cours d'une collision élastique la relation de phase entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ peut être détruite. Ce processus est caractérisé par le taux de collisions déphasantes γ_{ab}^{ph} [16,17].

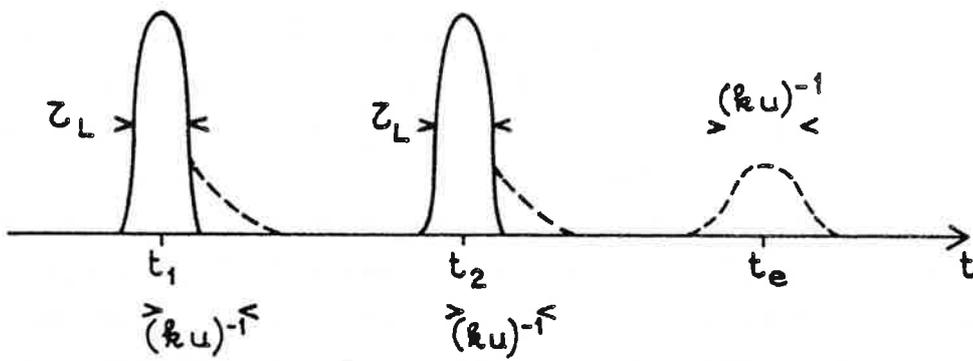


Figure II.15

Il est analogue au processus d'échange d'énergie entre spins observé en RMN [10]. Lorsque la cohérence ρ_{ab} survit à une collision, le changement de vitesse qu'elle subit cependant, perturbe le mécanisme de remise en phase des classes de vitesse [1,18]. Ce processus est analogue aux fluctuations de champ magnétique local rencontrées en RMN ;

- la relaxation par collisions inélastiques. Elle produit la transition collisionnelle entre états.

II.2.4. ECHO DE PHOTON STIMULE

Dans le paragraphe précédent nous avons montré qu'un signal d'écho naît de la mémoire conservée par les cohérences optiques de leur excitation par une séquence de deux impulsions résonnantes. Nous examinons maintenant le souvenir que les populations des niveaux conservent de cette excitation et le signal qui en résulte.

Pour illustrer ce processus considérons une séquence de deux impulsions d'aires $\theta_1 = \theta_2 = \pi/2$ séparées par un intervalle de temps t_{12} . Juste avant l'application de la seconde impulsion, les vecteurs de Bloch associés aux différentes classes de vitesse axiale sont distribués dans le plan transverse suivant l'angle $kv_z t_{12}$ décrit depuis leur position initiale commune (figure II.12). La seconde impulsion amène ces vecteurs dans le plan XOZ. La composante longitudinale du vecteur de Bloch associé à la classe de vitesse v_z s'écrit alors : $nW(v_z)\cos kv_z t_{12}$. Or cette composante longitudinale représente la différence des populations des niveaux dont la valeur à l'équilibre thermodynamique est $-nW(v_z)$. Ainsi une modulation sinusoïdale de période λ/t_{12} est-elle inscrite par la séquence d'impulsions dans la distribution de vitesse des populations des niveaux. Nous reconnaissons là une structure analogue à celle observée par Hahn dans une expérience d'écho de spin stimulé [10]. Cette structure est alors inscrite dans la distribution des spins en fonction du champ

magnétique statique effectif $H_0(\vec{r})$. Elle est analogue à celle obtenue par Ramsey dans son expérience en RMN sur jet atomique [9]. Tandis que la composante transverse du vecteur de Bloch poursuit sa rotation à la vitesse kv_z , la composante longitudinale reste fixe. Une troisième impulsion d'aire $\frac{\pi}{2}$ appliquée à l'instant t_3 construit une composante transverse à partir de la structure sinusoïdale inscrite dans la composante longitudinale. La rotation de cette composante autour de l'axe OZ fait apparaître un terme indépendant de v_z au bout d'un temps t_{12} après la troisième impulsion. Cette remise en phase détermine l'émission d'un rayonnement de précession libre appelé écho de photon stimulé [2,19].

Pour obtenir l'expression du terme de cohérence responsable du signal nous abandonnons la représentation du vecteur de Bloch et adoptons le formalisme du paragraphe II.2.3. A partir de l'équation (II.33) nous établissons l'expression de $\tilde{\rho}_{ab}(v_z, t)$ après la troisième impulsion :

$$\tilde{\rho}_{ab}(v_z, t) = \tilde{\rho}_{ab}^{(ns)}(v_z, t) + \tilde{\rho}_{ab}^{(s)}(v_z, t) \quad (\text{II.38})$$

où

$$\tilde{\rho}_{ab}^{(ns)}(v_z, t) = \alpha_3^{(1)} \tilde{\rho}_{ab}(v_z, t_3^-) + \beta_3^{(1)} \tilde{\rho}_{ba}(v_z, t_3^-) \quad (\text{II.39})$$

$$\tilde{\rho}_{ab}^{(s)}(v_z, t) = \gamma_3^{(1)} w(v_z, t_3^-) \quad (\text{II.40})$$

Le terme $\tilde{\rho}_{ab}^{(ns)}(v_z, t)$ provient de la composante transverse présente avant l'application de la troisième impulsion.

Elle se développe par application répétée de l'équation (II.33). Après intégration sur v_z on obtient :

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{ab}^{(ns)}(t) = -inW(v_z) \{ & a_1 b_1 a_2^2 a_3^2 \hat{w}(k(t-t_1)) - a_1 b_1 b_2^2 a_3^2 \hat{w}(k(t-2t_2+t_1)) + \\ & + a_1 b_1 b_2^2 b_3^2 \hat{w}(k(t-t_1+2t_2-2t_3)) - a_1 b_1 a_2^2 b_3^2 \hat{w}(k(t-2t_3+t_1)) + \\ & + (2a_1^2-1) a_2 b_2 a_3^2 \hat{w}(k(t-t_2)) - (2a_1^2-1) a_2 b_2 b_3^2 \hat{w}(k(t-2t_3+t_2)) \} \end{aligned} \quad (\text{II.41})$$

Ce terme est à l'origine d'un rayonnement de précession libre dont on reconnaît six composantes :

- deux d'entre elles sont synchrones des deux premières impulsions et correspondent au rayonnement analysé au paragraphe II.2.1 ;

- trois autres centrées respectivement en $2t_2-t_1$, $2t_3-t_1$, $2t_3-t_2$ correspondent aux signaux d'échos de photon habituel formés par les deux premières impulsions, la première et la troisième, et les deux dernières respectivement ;

- une autre, enfin, centrée en $2t_3-(2t_2-t_1)$, rend compte du signal d'écho que produit la troisième impulsion à partir de la composante transverse remise en phase en $2t_2-t_1$, par la séquence des deux premières impulsions.

Le terme $\tilde{\rho}_{ab}^{(s)}(v_z, t)$ provient de la composante longitudinale présente avant la troisième impulsion. Après intégration sur la vitesse on obtient :

$$\tilde{\rho}_{ab}^{(s)}(t) = -2inW(v_z) a_3 b_3 \left\{ (2a_1^2 - 1) (a_2^2 - \frac{1}{2}) \hat{W}(k(t-t_3)) - a_1 b_1 a_2 b_2 \left[\hat{W}(k(t-t_3+t_2-t_1)) + \hat{W}(k(t-t_3+t_1-t_2)) \right] \right\} \quad (\text{II.42})$$

On reconnaît dans ce terme :

- une composante synchrone de la troisième impulsion correspondant au rayonnement analysé au paragraphe II.2.1 ;

- une composante centrée en $t = t_3+t_1-t_2$;

- une composante centrée en $t = t_3+t_2-t_1$.

Cette dernière contribution donne naissance au signal d'écho de photon stimulé. C'est la seule contribution à $\tilde{\rho}_{ab}^{(s)}(t)$ qui soit susceptible de produire un signal observable à un instant t tel que $t-t_3 \gg (k\bar{v})^{-1}$.

Pour la formation de ce signal, la mémoire de l'excitation par la séquence des deux premières impulsions est stockée dans la modulation sinusoïdale qu'elles inscrivent dans la distribution de vitesse des populations des niveaux a et b. L'intensité du signal est affectée par l'effacement de cette structure dû aux mécanismes de relaxation. A la relaxation par émission spontanée s'ajoutent :

- la relaxation par collision élastique. Elle détruit la structure sinusoïdale d'autant plus rapidement que sa période λ/t_{12} est plus petite. C'est un moyen d'accès à la section efficace différentielle de diffusion élastique en phase vapeur [2,19,20] ;

- la relaxation par collision inélastique. Elle produit la transition entre a et b dans un système à deux niveaux. Si d'autres niveaux existent, un transfert collisionnel de la structure sinusoïdale peut s'opérer vers un niveau c. Cette structure peut alors être sondée par une troisième impulsion laser accordée à une transition c-d et une information peut être ainsi obtenue sur le changement de vitesse qui accompagne un transfert collisionnel [2].

Dans cette présentation des processus d'écho de photons nous avons limité le calcul au cas d'un système à deux niveaux excités par une séquence d'impulsions colinéaires. Dans le paragraphe suivant nous renonçons à ces hypothèses restrictives.

II.3. GENERALISATION : SYSTEMES A PLUSIEURS NIVEAUX, IMPULSIONS EXCITATRICES NON COLINEAIRES

II.3.1. COMPOSITION DES PHASES

Il est difficile de résoudre l'équation de la matrice densité en dehors du cadre fixé au paragraphe II.2. Il est cependant possible de préciser quelques caractéristiques du signal d'écho, telles que la direction ou l'instant d'émission, sans résoudre exactement l'équation. Ces caractéristiques découlent de la forme prise par la phase de la cohérence optique qui est à l'origine du rayonnement de précession libre. Nous établissons cette phase à l'aide de règles simples. Nous déduisons de cette phase les carac-

téristiques d'émission de quelques signaux d'écho de photon.

L'excitation à résonance d'une transition atomique par une impulsion laser conduit à la formation de nouveaux termes de cohérence et de populations à partir des cohérences et populations existantes. Nous supposons qu'à l'instant t_i deux transitions au plus sont simultanément excitées. Chacune de ces transitions met en jeu un ou deux photons. Nous supposons de plus qu'à l'instant t_i l'excitation de chaque transition est produite suivant un vecteur d'onde unique. Nous rejetons ainsi en particulier la présence simultanée de deux champs $E(\omega, \vec{k})$ et $E'(\omega', \vec{k}')$ tels que $\omega = \omega'$ et $\vec{k} \neq \vec{k}'$. Considérons un élément de matrice densité ρ_{ij} . Dans le référentiel de l'atome sa phase s'écrit : $\varphi_{ij}^-(t) = (\omega_i - \omega_j)t$. A l'instant t_i sont excitées simultanément les transitions $i-k$ et $j-l$. Les fréquences d'excitation de ces transitions sont :

$$\omega_1 = \varepsilon_{ik}(\omega_i - \omega_k), \quad \omega_2 = \varepsilon_{j\ell}(\omega_j - \omega_\ell) \quad \text{où } \varepsilon_{ik} = \text{signe}(\omega_i - \omega_k).$$

A partir des ρ_{ij} les champs appliqués construisent l'élément $\rho_{k\ell}$ dont la phase est obtenue en ajoutant à $\varphi_{ij}^-(t)$ la phase apportée par les champs :

$$\varphi_{k\ell}^+(t) = (\omega_i - \omega_j)t + \varepsilon(\omega_1 t - \vec{k}_1 \vec{r}(t_i)) + \varepsilon'(\omega_2 t - \vec{k}_2 \vec{r}(t_i)) \quad (\text{II.43})$$

où $\varepsilon = \pm 1$ et $\varepsilon' = \pm 1$, et $\vec{r}(t_i)$ est la position de l'atome à l'instant t_i . La phase $\varphi_{k\ell}^+(t)$, associée à l'élément de matrice $\rho_{k\ell}$, doit évoluer à la fréquence $\omega_k - \omega_\ell$. Cette condition impose que :

$$\omega_i + \varepsilon\omega_1 = \omega_k, \quad \omega_j + \varepsilon'\omega_2 = \omega_\ell$$

On en déduit : $\varepsilon = -\varepsilon_{ik}$ et $\varepsilon' = \varepsilon_{j\ell}$. L'équation (II.43) devient alors :

$$\varphi_{k\ell}^+(t) = \varphi_{ij}^-(t) - \varepsilon_{ik}(\omega_1 t - \vec{k}_1 \vec{r}(t_i)) + \varepsilon_{j\ell}(\omega_2 t - \vec{k}_2 \vec{r}(t_i)) \quad (\text{II.44})$$

Par ailleurs, la position de l'atome à l'instant t s'exprime en fonction de la position à l'instant t_i par

$$\vec{r}(t) = \vec{r}(t_i) + \vec{v}(t - t_i).$$

Finalement, on obtient la règle de composition des phases qui établit à l'instant t la forme $\varphi_{k\ell}^+(t)$ que revêt la phase de $\rho_{k\ell}$ après excitation en t_i , en fonction de la forme $\varphi_{ij}^-(t)$ que revêtirait la phase de ρ_{ij} en l'absence d'excitation

$$\varphi_{k\ell}^+(t) = \varphi_{ij}^-(t) - \varepsilon_{ik} (\omega_1 t - \vec{k}_1 \vec{r}(t) + \vec{k}_1 \vec{v}(t-t_i)) + \varepsilon_{j\ell} (\omega_2 t - \vec{k}_2 \vec{r}(t) + \vec{k}_2 \vec{v}(t-t_i)) \quad (\text{II.45})$$

Cette règle générale peut être particularisée.

a) Formation de ρ_{ji} à partir de ρ_{ij} .

Ce processus est opéré par une seule interaction à la fréquence $\omega = \varepsilon_{ij} \omega_{ij} = \varepsilon_{ji} \omega_{ji}$. Reportant dans l'expression (II.45) on obtient :

$$\varphi_{ji}^+(t) = \varphi_{ij}^-(t) - 2\varepsilon_{ij} (\omega t - \vec{k} \vec{r}(t) + \vec{k} \vec{v}(t-t_i)) \quad (\text{II.46})$$

b) Formation de $\rho_{i\ell}$ à partir de ρ_{ij} .

Une seule transition est mise en jeu. L'expression (II.45) devient :

$$\varphi_{i\ell}^+(t) = \varphi_{ij}^-(t) + \varepsilon_{j\ell} (\omega t - \vec{k} \vec{r}(t) + \vec{k} \vec{v}(t-t_i)) \quad (\text{II.47})$$

Si une transition déterminée est soumise à deux excitations simultanées de même fréquence ω mais de vecteurs d'ondes différents \vec{k} et \vec{k}' , une contribution de la forme $n(\vec{k}-\vec{k}') \vec{r}(t_i)$ où $n \in \mathbb{Z}$ doit être adjointe au membre de droite de l'équation (II.45). C'est une éventualité que nous rejetons dans nos hypothèses.

Différents chemins conduisent à la formation, à partir des populations initiales, d'un terme de cohérence ρ_{ab} , source de rayonnement de précession libre sur la transition a-b. Chaque chemin est constitué par la séquence d'interaction avec les impulsions excitatrices. Les caractéristiques du rayonnement produit à partir de chaque chemin sont déduites de la phase accumulée le long du chemin considéré. La phase finale comprend une composante de phase spatiale qui indique la direction d'émission du rayonnement et une composante fonction de \vec{v} dont on déduit l'instant d'émission.

Cette phase se calcule par application répétée de la règle de composition (équation II.45). Nous suivons cette démarche pour déterminer les caractéristiques des signaux d'écho de photon simple et stimulé.

II.3.2. ECHO SIMPLE

La formation de ce signal est traitée au paragraphe II.2.2. dans le cas de deux impulsions colinéaires. La condition de colinéarité est maintenant abandonnée. La première impulsion, de vecteur d'onde \vec{k}_1 , crée une cohérence ρ_{ab} à partir de la population ρ_{aa} . On a $\varphi_{aa}^-(t) = 0$ et

$$\varphi_{ab}^+(t) = \varepsilon_{ab} (\omega t - \vec{k}_1 \vec{r}(t) + \vec{k}_1 \vec{v}(t-t_1)) \quad (\text{II.48})$$

La deuxième impulsion, de vecteur d'onde \vec{k}_2 , produit une contribution à ρ_{ba} à partir de ρ_{ab} . La phase correspondante s'écrit $\varphi_{ba}^+(t) = \varphi_{ab}^-(t) - 2\varepsilon_{ab} (\omega t - \vec{k}_2 \vec{r}(t) + \vec{k}_2 \vec{v}(t-t_2))$ (II.49)
On obtient donc finalement :

$$\varphi_{ba}^+(t) = \varepsilon_{ab} (-\omega t + (2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \vec{r}(t) + (\vec{k}_1(t-t_1) - 2\vec{k}_2(t-t_2)) \vec{v}) \quad (\text{II.50})$$

où $|\vec{k}_1| = |\vec{k}_2| = k$.

Le champ est émis par l'échantillon à la fréquence ω , en phase avec les dipôles créés. Son vecteur d'onde \vec{k}_e , de longueur k , est dirigé selon le vecteur $(2\vec{k}_2 - \vec{k}_1)$ qui caractérise la modulation spatiale de la densité de polarisation optique formée dans l'échantillon. L'onde émise en un point \vec{r} de l'échantillon présente en un point \vec{r}' un déphasage par rapport aux dipôles créés en ce point et donc par rapport à l'onde qu'ils émettent. Cet effet reste négligeable tant que la condition d'accord de phase :

$$\left(|2\vec{k}_2 - \vec{k}_1| - k \right) L \ll 1 \quad (\text{II.51})$$

est vérifiée. En fonction de l'angle $\alpha = (\vec{k}_2, \vec{k}_1)$, la condition d'accord de phase s'écrit $kL\alpha^2 \ll 1$. Des valeurs typiques $k = 10^7 \text{ m}^{-1}$, $L = 10 \text{ cm}$, conduisent à $\alpha^2 \ll 10^{-6}$.

Par ailleurs, la remise en phase des différentes classes de vitesse conditionne l'émission du signal d'écho. En raison de l'isotropie de la distribution de vitesse, le terme qui dépend de \vec{v} dans l'équation (II.50) est minimum lorsque la norme de $\vec{V} = -\vec{k}_1(t-t_1) + 2\vec{k}_2(t-t_2)$ est minimum. On exprime \vec{V} sous la forme :

$$\vec{V} = \vec{k}_0(t-2t_2+t_1) + \vec{K}(3t-2t_2-t_1)$$

où $2\vec{K} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$, $2\vec{k}_0 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$. Au premier ordre en $\alpha = 2K/k_0$, le minimum de $|\vec{V}|$ est obtenu pour $t = 2t_2 - t_1$. A cet instant on a :

$$\vec{V} = 4\vec{K}(t_2 - t_1).$$

Il subsiste donc à l'instant de remise en phase optimale des dipôles un effet Doppler résiduel qui maintient entre les classes de vitesse un déphasage de l'ordre de $2k\bar{v}\alpha(t_2 - t_1)$. Cet effet Doppler est dû à la composante de vitesse transversale par rapport à la direction de propagation des faisceaux excitateurs. Pour une valeur typique $k\bar{v} \approx 10^{10} \text{ s}^{-1}$, la condition d'élimination de l'effet Doppler transversal

$$2k\bar{v}\alpha(t_2 - t_1) \ll 1$$

est moins restrictive que la condition d'accord de phase examinée plus haut tant que $t_2 - t_1 < 50 \text{ ns}$.

Lorsque les conditions d'accord de phase et d'élimination de l'effet Doppler transversal sont satisfaites, un écho de photon est émis dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, distincte de celles des impulsions excitatrices \vec{k}_1 et \vec{k}_2 . Cette propriété est mise à profit pour améliorer la discrimination du signal d'écho [21].

La règle de composition des phases est établie pour des transitions à un ou deux photons. La procédure développée dans ce paragraphe s'applique aussi au cas des échos à deux photons [22] et des échos Raman [23].

II.3.3. ECHO DE PHOTON STIMULE

Un système à deux niveaux est soumis à une séquence de trois impulsions de vecteur d'onde $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3$, accordées à résonance avec la transition optique. Les deux premières impulsions modifient la population du niveau a suivant deux chemins possibles

$$[A] \rho_{aa} \rightarrow \rho_{ab} \rightarrow \rho_{aa}$$

$$[B] \rho_{aa} \rightarrow \rho_{ba} \rightarrow \rho_{aa}$$

Les phases associées aux contributions à ρ_{aa} obtenues suivant ces deux chemins sont respectivement :

$$\begin{aligned} \varphi_{aa}^+(t; [A]) &= \varepsilon_{ab} \left((\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \vec{r}(t) + \vec{v} (\vec{k}_1 (t-t_1) - \vec{k}_2 (t-t_2)) \right) \\ \varphi_{aa}^+(t; [B]) &= -\varphi_{aa}^+(t; [A]) \end{aligned} \quad (II.52)$$

La troisième impulsion établit, à partir de ρ_{aa} , une contribution à la cohérence ρ_{ab} . La composition des phases s'écrit :

$$\varphi_{ba}^+(t) = \varphi_{aa}^-(t) - \varepsilon_{ab} (\omega t - \vec{k}_3 \vec{r}(t) + \vec{k}_3 \vec{v}(t-t_3)) \quad (II.53)$$

Par substitution de (II.53) dans (II.52) on obtient finalement :

$$\begin{aligned} \varphi_{ba}^+(t; [A]) &= \varepsilon_{ab} \left(-\omega t + (\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1) \vec{r}(t) \right. \\ &\quad \left. + (\vec{k}_1 (t-t_1) - \vec{k}_2 (t-t_2) - \vec{k}_3 (t-t_3)) \vec{v} \right) \\ \varphi_{ba}^+(t; [B]) &= \varepsilon_{ab} \left(-\omega t + (\vec{k}_3 + \vec{k}_1 - \vec{k}_2) \vec{r}(t) \right. \\ &\quad \left. + (-\vec{k}_1 (t-t_1) + \vec{k}_2 (t-t_2) - \vec{k}_3 (t-t_3)) \vec{v} \right) \end{aligned} \quad (II.54)$$

A la différence du processus d'écho simple, le processus d'écho stimulé permet de choisir des vecteurs d'onde non colinéaires tels que $|\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1| = k$ ou $|\vec{k}_2 - \vec{k}_1 - \vec{k}_3| = k$. Le vecteur d'onde de l'écho, $\vec{k}_e = \vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ (chemin [A]) ou $\vec{k}_e = \vec{k}_3 + \vec{k}_1 - \vec{k}_2$ (chemin [B]) vérifie alors exactement la condition d'accord de phase. Les combinaisons possibles sont représentées sur la figure II.16 dans une configuration co-

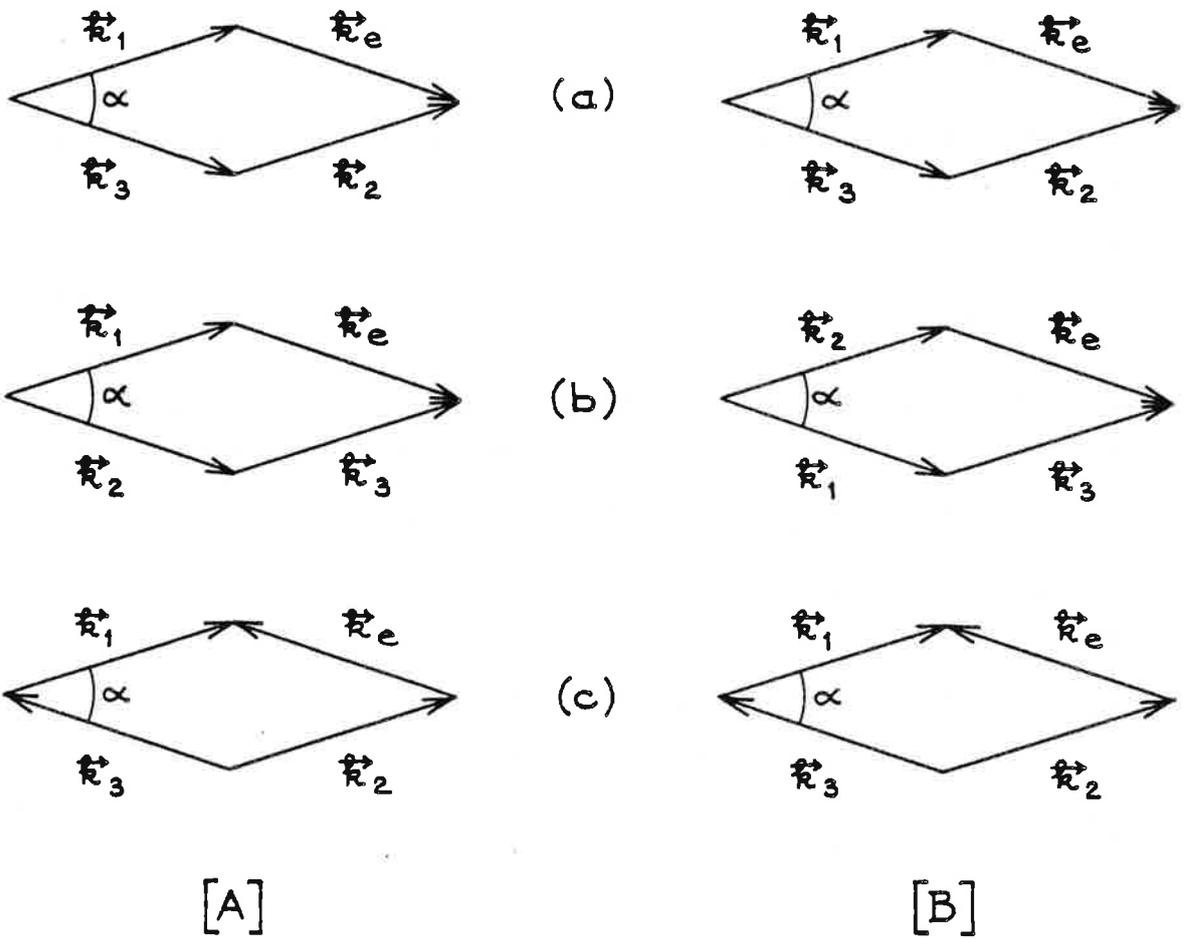


Figure II.16

planaire* [24].

Une remise en phase des dipôles, suffisante pour l'émission d'un signal d'écho stimulé, n'est possible que dans les configurations (a) et (b) suivant le chemin [A] et (c) suivant le chemin [B]. Les termes dépendant de \vec{v} dans l'équation (II.54) sont alors respectivement :

$$(a) [A] : \left[-\vec{k}_0(t-t_3+t_1-t_2) + \vec{K}(t_3-t+t_1-t_2) \right] \vec{v}$$

$$\text{où } 2\vec{K} = \vec{k}_3 - \vec{k}_1, \quad 2\vec{k}_0 = \vec{k}_3 + \vec{k}_1$$

$$(b) [B] : \left[\vec{k}_0(-t+t_3-t_1+t_2) + \vec{K}(t_1+t_2-t_3-t) \right] \vec{v}$$

$$\text{où } 2\vec{K} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1, \quad 2\vec{k}_0 = \vec{k}_2 + \vec{k}_1$$

$$(c) [B] : \left[\vec{k}_0(-t+t_3-t_1+t_2) + \vec{K}(-t+t_1-t_2+t_3) \right] \vec{v}$$

$$\text{où } 2\vec{K} = \vec{k}_1 + \vec{k}_3, \quad 2\vec{k}_0 = \vec{k}_3 - \vec{k}_1$$

Au premier ordre en $\alpha = 2K/k_0$, la remise en phase optimale s'accomplit à l'instant $t = t_3 + t_2 - t_1$. A cet instant les termes dépendant de \vec{v} dans l'équation (II.54) sont respectivement :

$$(a) [A] : 2\vec{K}\vec{v}(t_2-t_1)$$

$$(b) [A] : 2\vec{K}\vec{v}(t_3-t_1)$$

$$(c) [B] : 2\vec{K}\vec{v}(t_2-t_1)$$

La condition d'élimination de l'effet Doppler résiduel s'écrit $k\bar{v}\alpha(t_2-t_1) \ll 1$ dans les configurations (a) [A] et (c) [B]. Dans la configuration (b) [A], le terme de phase

* La géométrie coplanaire n'est pas indispensable pour réaliser la condition d'accord de phase [25,26]. Ainsi, soient $\vec{k} = \frac{\vec{k}_3 - \vec{k}_2}{2}$, $\vec{k}_0 = \frac{\vec{k}_3 + \vec{k}_2}{2}$ et soit \vec{K}' tel que $|\vec{k}| = |\vec{K}'|$ et $\vec{k} \cdot \vec{K}' = \vec{K}' \cdot \vec{k}_0 = 0$ (figure II.17). Alors, si $\vec{k}_1 = \vec{k}_0 + \vec{K}'$, le vecteur d'onde de l'écho formé suivant le chemin [A] est : $\vec{k}_e = \vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1 = \vec{k}_0 - \vec{K}'$ et ce vecteur satisfait la condition $|\vec{k}_e| = k$.

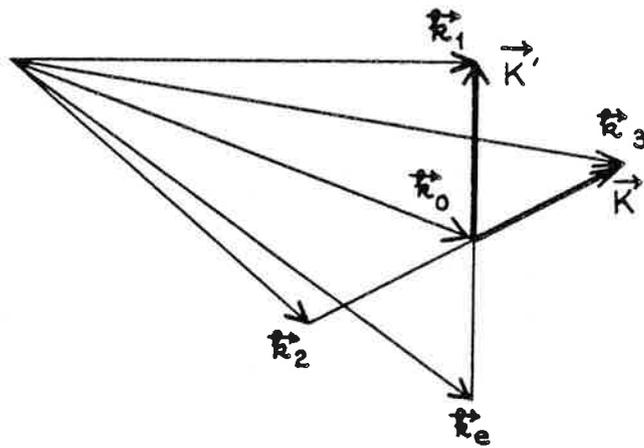


Figure II.17

$2\vec{k}\vec{v}(t_3-t_1)$ rend compte à la fois du déphasage Doppler résiduel des dipôles au cours des intervalles $[t_1, t_2]$ et $[t_3, t_3+t_2-t_1]$ et de l'effacement par diffusion du réseau spatial de populations construit par la séquence de deux premières impulsions. La condition d'observation de l'écho stimulé s'écrit alors $k\bar{v}\alpha(t_3-t_1) \ll 1$.

Les exemples examinés dans les paragraphes II.3.2 et II.3.3 concernent des systèmes à deux niveaux. La démarche proposée au paragraphe II.3.1 s'applique cependant à des systèmes plus complexes. Elle est adaptée en particulier à l'étude des "échos de photons à trois niveaux" [27].

III. ECHOS DE PHOTON EN LUMIERE INCOHERENTE.

LIMITE DES CHAMPS FAIBLES

SECTION III

ECHOS DE PHOTON EN LUMIERE INCOHERENTE. LIMITE DES CHAMPS FAIBLES

III.1. LA RESOLUTION TEMPORELLE DANS UNE EXPERIENCE D'ECHO DE PHOTON

Dans le chapitre précédent, les impulsions laser sont caractérisées par leur durée τ_L et l'intervalle de temps $t_{\ell+1} - t_\ell$ qui sépare deux impulsions successives. Les paramètres temporels du système atomique sont les taux de relaxation γ_{ij} et la largeur Doppler $k\bar{v}$. Nous avons supposé que la durée des impulsions est beaucoup plus courte que tous les temps caractéristiques du système atomique : $\gamma_{ij}\tau_L \ll 1$, $k\bar{v}\tau_L \ll 1$. Deux conséquences en découlent :

- L'intervalle $t_{\ell+1} - t_\ell$ entre impulsions est déterminé avec une résolution τ_L . Comme $\gamma_{ij}\tau_L \ll 1$, cet intervalle peut être choisi très grand par rapport à τ_L .

- Un domaine spectral de largeur τ_L^{-1} est excité de façon cohérente. En d'autres termes, l'excitation établit une corrélation entre des éléments spectraux distants de τ_L^{-1} . En particulier la distribution de vitesse toute entière est excitée de façon cohérente. Par ailleurs, deux états b et c reliés à l'état a par transition optique et tels que $(\omega_b - \omega_c)\tau_L \ll 1$ peuvent être excités de façon cohérente. Un effet de battement quantique peut alors se manifester [21].

Ainsi l'excitation laser peut-elle dans ces conditions être considérée comme instantanée. Lorsque ces conditions ne sont plus satisfaites, un paramètre temporel supplémentaire complète la caractérisation des impulsions. Il s'agit de leur largeur spectrale ω_L dont nous supposons que l'inverse ω_L^{-1} s'identifie à leurs temps d'autocorrélation τ_c .

Examinons d'abord le cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier, telle que $\omega_L \tau_L \sim 1$. L'intervalle entre impulsions est toujours déterminé avec la résolution τ_L . L'impulsion laser excite un domaine spectral de largeur τ_L^{-1} , résonnant à τ_L^{-1} près avec le laser. Si $k\bar{v}\tau_L > 1$, l'excitation ne couvre qu'un domaine limité de la distribution de vitesse. Deux états distants de $(\omega_b - \omega_c) > \tau_L^{-1}$ ne peuvent être excités simultanément.

Dans le cas de la formation des échos par une séquence d'impulsions de lumière incohérente ($\omega_L \tau_L \gg 1$), toutes produites par des sources distinctes, le temps de résolution dans la détermination de $t_{\lambda+1} - t_{\lambda}$ reste τ_L et la distance maximum de corrélation entre éléments spectraux reste τ_L^{-1} .

Considérons maintenant le cas où deux impulsions séparées dans le temps sont formées par dédoublement, retard différentiel puis recombinaison à partir d'un seul faisceau initial de lumière incohérente. Ces deux impulsions sont alors cohérentes entre elles. Il a été montré récemment [5-7] que le temps pendant lequel évolue une cohérence optique ρ_{ab} entre deux interactions successives avec ces deux impulsions accordées sur la transition a-b est déterminé avec une résolution $\tau_c = \omega_L^{-1} \ll \tau_L$. L'établissement d'une corrélation entre éléments spectraux distants de τ_c^{-1} est donc attendue. Une telle corrélation conduirait à l'excitation cohérente de toute la distribution de vitesse pourvu que $k\bar{v}\tau_c \ll 1$, ainsi qu'à l'apparition de battements quantiques entre niveaux distants de $(\omega_b - \omega_c) < \tau_c^{-1}$. Nous examinons la manifestation d'une telle corrélation dans le cas d'un processus d'écho de photon stimulé produit dans un système à deux niveaux par des impulsions de lumière incohérente qui vérifient la relation : $k\bar{v}\tau_c \ll 1 \ll k\bar{v}\tau_L$.

III.2. ECHO DE PHOTON STIMULE EN LUMIERE INCOHERENTE

III.2.1. POSITION DU PROBLEME

Nous recherchons, dans le signal d'écho stimulé, la manifestation de l'excitation cohérente de la distribution de vitesse sur toute sa largeur lorsque $k\bar{v}\tau_c \ll 1 \ll k\bar{v}\tau_L$. Elle nous est apportée par le comportement du signal au voisinage de $|t_2 - t_1| = 0$.

Considérons les configurations de vecteurs d'onde (b) [A] et (b) [B] de la figure II.16. Nous avons vu au paragraphe II.3.3 que la remise en phase des classes de vitesse conditionne l'émission d'un signal d'écho stimulé et que cette remise en phase, assurée dans la configuration (b) [A], est impossible dans la configuration (b) [B]. Or le passage de $t_2 - t_1 > 0$ à $t_2 - t_1 < 0$ revient à échanger les deux premières impulsions et à passer de la configuration (b) [A] à la configuration (b) [B]. La disparition du signal dans la configuration (b) [B] résulte du déphasage des classes de vitesse pendant l'intervalle entre les deux premières impulsions. Si $k\bar{v}\tau_L \ll 1$, le déphasage entre classes de vitesses s'accomplit en un temps de l'ordre de $(k\bar{v})^{-1}$. Le signal disparaît dans la configuration (b) [B] dès que l'intervalle entre les deux premières impulsions excède $(k\bar{v})^{-1}$. Ainsi, l'extinction du signal au passage de la configuration (b) [A] à la configuration (b) [B] s'opère-t-elle sur un domaine de variation de $|t_2 - t_1|$ de l'ordre de $(k\bar{v})^{-1}$. Si $k\bar{v}\tau_L > 1$, et si, dans le cas où $\omega_L > k\bar{v}$, les deux premières impulsions ne sont pas cohérentes entre elles, un domaine spectral de largeur τ_L^{-1} est excité de façon cohérente et le déphasage entre classes de vitesses s'opère sur un intervalle de temps de l'ordre de τ_L . L'extinction du signal au passage de (b) [A] à (b) [B] s'opère sur un intervalle de l'ordre de τ_L .

L'excitation cohérente de la distribution de vitesse sur toute sa largeur par une séquence de deux impulsions mutuellement cohérentes, telles que $k\bar{v}\tau_c \ll 1 \ll k\bar{v}\tau_L$ devrait se manifester par l'extinction du signal au passage de (b) [A] à (b) [B] sur un domaine de variation de $|t_2 - t_1|$ de l'ordre de $(k\bar{v})^{-1}$ alors même que $k\bar{v}\tau_L > 1$. Dans les paragraphes qui suivent nous nous proposons de préciser ces propriétés par le calcul détaillé du signal d'écho de photon stimulé et par la discussion de ses conditions d'observation.

III.2.2. EXPRESSION FORMELLE DU SIGNAL

Nous considérons la formation d'un signal d'écho stimulé dans une vapeur composée de systèmes à deux niveaux a et b. Trois impulsions laser de vecteurs d'onde $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3$, résonnantes avec la transition a-b, sont appliquées à l'échantillon aux instants t_1, t_2, t_3 . Nous nous plaçons dans le cadre des hypothèses suivantes :

H₁ : les impulsions 1 et 3 sont colinéaires : $\vec{k}_1 = \vec{k}_3$

H₂ : l'aire $\theta_3 = \int \chi_3(t) dt$ de la troisième impulsion vérifie $\theta_3 \ll 1$

H₃ : l'impulsion 3 traverse l'échantillon après extinction des deux premières impulsions.

Les deux premières impulsions inscrivent dans la différence des populations des niveaux a et b un réseau de Bragg de vecteur $\vec{K} = (\vec{k}_2 - \vec{k}_1)$ (cf. paragraphe II.3.3). La différence de populations résultante peut se développer en composantes de Fourier sous la forme :

$$n_{ab}(\vec{r}, \vec{v}) = \sum_{p=0}^{\infty} \hat{n}_{ab}(p; \vec{v}) \exp -ip\vec{K}\vec{r} \quad (\text{III.1})$$

Le signal d'écho de photon stimulé est produit par la cohérence optique ρ_{ab} qui résulte de l'interaction de la troisième impulsion avec $n_{ab}(\vec{r}, \vec{v})$. Au premier ordre de perturbation en $\chi_3(t)$ on obtient :

$$\rho_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) = \frac{i}{2} \sum_p \int_{-\infty}^t dt' \chi_3(t') e^{-i(\vec{k}_3 + p\vec{K})\vec{r} + i\vec{k}_3 \vec{v}(t-t')} \hat{n}_{ab}(p; \vec{v}) \quad (\text{III.2})$$

Le champ produit est obtenu par sommation des contributions des différentes classes de vitesse. La composante d'ordre p est proportionnelle à :

$$E_e(\vec{r}, t) = e^{i(\omega t - (\vec{k}_3 + p\vec{K})\vec{r})} \int_0^\infty d\tau \chi_3(t-\tau) \int d^3v \hat{n}_{ab}(p, \vec{v}) e^{i\vec{k}_3 \vec{v}\tau} \quad (\text{III.3})$$

Nous envisageons les rayonnements émis dans les directions :

$$\vec{k}_e = \vec{k}_3 + \vec{K} = \vec{k}_2 \quad \text{et} \quad \vec{k}'_e = \vec{k}_3 - \vec{K} = 2\vec{k}_1 - \vec{k}_2.$$

Les énergies $W_{\vec{k}_e}$ et $W_{\vec{k}'_e}$ des signaux correspondants sont proportionnelles à :

$$W_{\vec{k}_e} = \int dt \int_0^\infty d\tau' \int_0^\infty d\tau \chi_3^*(t-\tau) \chi_3(t-\tau') \int d^3v \int d^3v' \hat{n}_{ab}^*(1; \vec{v}) \hat{n}_{ab}(1, \vec{v}') \times e^{-i\vec{k}_3(\vec{v}\tau - \vec{v}'\tau')} \quad (\text{III.4})$$

$$W_{\vec{k}'_e} = \int dt \int_0^\infty d\tau' \int_0^\infty d\tau \chi_3^*(t-\tau) \chi_3(t-\tau') \int d^3v \int d^3v' \hat{n}_{ab}^*(-1, \vec{v}) \hat{n}_{ab}(-1, \vec{v}') \times e^{-i\vec{k}_3(\vec{v}\tau - \vec{v}'\tau')} \quad (\text{III.4})$$

Pour déterminer ces expressions il est nécessaire de préciser la forme des termes $\hat{n}_{ab}(\pm 1, \vec{v})$. Nous l'obtenons d'abord dans la limite des champs faibles.

III.3. EXPRESSION DU SIGNAL DANS LA LIMITE DES CHAMPS FAIBLES

A l'ordre le plus bas, la perturbation produite par les deux premières impulsions dans la différence des populations des niveaux a et b s'écrit :

$$n_{ab}^{(2)}(\vec{r}, \vec{v}) = -\frac{1}{2} n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \left[e^{-i\vec{K}\vec{r}} \int_0^{+\infty} dt \int_0^\infty d\tau e^{i\vec{k}_0 \vec{v}\tau} \chi_1^*(t) \chi_2(t-\tau) + e^{i\vec{K}\vec{r}} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_0^\infty d\tau e^{i\vec{k}_0 \vec{v}\tau} \chi_2^*(t) \chi_1(t-\tau) \right] + C.C. \quad (\text{III.5})$$

$$\text{où } \vec{k}_0 = (\vec{k}_1 + \vec{k}_2)/2$$

Cette expression se réarrange sous la forme :

$$n_{ab}^{(2)}(\vec{r}, \vec{v}) = -\frac{1}{2} n_{ab}^{(0)}(\vec{r}, \vec{v}) e^{-i\vec{K}\vec{r}} S(\vec{k}_0, \vec{v}) + \text{C.C.} \quad (\text{III.6})$$

$$\text{où } S(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_{-\infty}^{+\infty} dt' e^{i\omega t} \chi_1^*(t') \chi_2(t'-t) \quad (\text{III.7})$$

Dans l'établissement de l'équation (III.5) nous négligeons la diffusion des atomes au cours de l'intervalle de temps qui sépare les deux premières impulsions de la troisième (cf. paragraphe II.3.3).

A cette étape du calcul, la propriété de cohérence mutuelle des deux premières impulsions est introduite sous la forme :

$$\chi_2(t) = \chi_1(t-t_{12}) \text{ où } t_{12} = t_2 - t_1 \quad (\text{III.8})$$

L'équation (III.6) devient alors :

$$n_{ab}^{(2)}(\vec{r}, \vec{v}) = -\frac{1}{2} n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \exp[-i(\vec{K}\vec{r} + \vec{k}_0 \vec{v} t_{12})] S(\vec{k}_0, \vec{v}) + \text{C.C.} \quad (\text{III.9})$$

$$\text{où } S(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_{-\infty}^{+\infty} dt' e^{i\omega t} \chi_1^*(t') \chi_1(t'-t) \quad (\text{III.10})$$

On constate qu'au deuxième ordre du développement perturbatif seules apparaissent les composantes de Fourier $\hat{n}_{ab}(0, \vec{v})$ et $\hat{n}_{ab}(\pm 1, \vec{v})$ du réseau de Bragg mentionné au paragraphe précédent. On obtient plus précisément :

$$\hat{n}_{ab}(1, v) = -\frac{1}{2} n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) S(\vec{k}_0, \vec{v}) \exp[-i\vec{k}_0 \vec{v} t_{12}] = \hat{n}_{ab}^*(-1, \vec{v}) \quad (\text{III.11})$$

Reportant ces expressions dans l'équation (III.4) on trouve enfin

$$W_{\vec{k}_e} \propto \int_0^\infty d\tau' \int_0^\infty d\tau \chi_3^*(t-\tau) \chi_3(t-\tau') \int d^3v \int d^3v' n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) n_{ab}^{(0)}(\vec{v}') \times \\ \times S^*(\vec{k}_0, \vec{v}) S(\vec{k}_0, \vec{v}') \times \exp[-i[\varphi_-(\vec{v}, \tau) - \varphi_-(\vec{v}', \tau')]] \quad (\text{III.12})$$

$$W_{\vec{k}_e} = \int_0^\infty d\tau' \int_0^\infty d\tau \chi_3^*(t-\tau) \chi_3(t-\tau') \int d^3v \int d^3v' n_{ab}^{(o)}(\vec{v}) n_{ab}^{(o)}(\vec{v}') \\ S^*(\vec{k}_o \vec{v}) S(\vec{k}_o \vec{v}') \exp -i \left[\varphi_+(\vec{v}, \tau) - \varphi_+(\vec{v}', \tau') \right] \quad (\text{III.13})$$

où $\varphi_{\pm}(\vec{v}, \tau) = (\vec{k}_3 \tau \pm \vec{k}_o t_{12}) \vec{v}$

Les champs $\chi_i(t)$ sont des fonctions aléatoires du temps. Expérimentalement on enregistre les signaux successifs produits par une série de séquences excitatrices. L'intensité du signal est une fonction aléatoire du numéro d'ordre dans cette série. Seule la moyenne des signaux est significative. La moyenne d'un nombre infini de signaux coïncide avec l'espérance mathématique que nous déterminons dans le paragraphe suivant après avoir précisé les propriétés statistiques du champ excitateur.

III.4. EXPRESSION DU SIGNAL EN MOYENNE STATISTIQUE

III.4.1. PROPRIETES STATISTIQUES DU CHAMP EXCITATEUR

Les impulsions excitatrices de durée τ_L et de largeur spectrale ω_L , telle que $\omega_L \tau_L \gg 1$, sont représentées par leur fréquence de Rabi $\chi(t)$, fonction complexe dont l'amplitude et la phase sont des fonctions aléatoires du temps.

Nous supposons que $\chi(t)$ peut s'écrire sous la forme :

$$\chi(t) = \chi^o(t) \varepsilon(t) \quad (\text{III.14})$$

où $\chi^o(t)$ est une fonction lentement variable du temps : $|d\chi^o(t)/dt| \sim \chi^o(t)/\tau_L$ et $\varepsilon(t)$ est une fonction aléatoire. Nous désignons par le symbole $\langle \rangle$ l'espérance mathématique d'une fonction aléatoire. Dans notre cas l'espérance mathématique s'identifie à la moyenne réalisée sur un nombre infini de séquences d'excitations. La fonction $\varepsilon(t)$ dont nous supposons l'espérance mathématique nulle et la

densité de probabilité indépendante du temps est dite centrée et stationnaire. Il s'ensuit que :

$$\begin{aligned} \langle \varepsilon(t) \rangle &= 0 \\ \langle \varepsilon(t) \varepsilon^*(t-\tau) \rangle &= g(\tau) \\ \langle \varepsilon(t) \varepsilon(t-\tau) \rangle &= \langle \varepsilon^*(t) \varepsilon^*(t-\tau) \rangle = 0 \end{aligned} \quad (\text{III.15})$$

La fonction $g(\tau)$ est appelée fonction d'autocorrélation. Sa largeur τ_c s'identifie à l'inverse de la largeur spectrale : $\tau_c \approx \omega_L^{-1}$. La fonction $\varepsilon(t)$ est normalisée de façon que $g(0) = 1$. Dans ces conditions, l'intensité moyenne de l'impulsion décrite par $\chi(t)$ est proportionnelle à $\langle \chi(t) \chi^*(t) \rangle = |\chi^0(t)|^2$. Ainsi la fonction $|\chi^0(t)|^2$ apparaît-telle comme l'enveloppe de l'intensité de l'impulsion excitatrice. Sa largeur est τ_L .

En outre nous supposons que le processus aléatoire représenté par $\varepsilon(t)$ est gaussien. On peut alors faire usage de la propriété de factorisation des moments [28,29]

$$\langle \varepsilon(t_1) \dots \varepsilon(t_n) \varepsilon^*(t_{n+1}) \dots \varepsilon^*(t_{2n}) \rangle = \sum_P \prod_{j=1}^n \langle \varepsilon(t_j) \varepsilon^*(t_{P(n+j)}) \rangle \quad (\text{III.16})$$

où la somme porte sur les permutations des n entiers compris entre $n+1$ et $2n$.

Enfin nous supposons que les deux premières impulsions sont décorréliées de la troisième :

$$\begin{aligned} \langle \varepsilon_1(t) \varepsilon_3^*(t') \rangle &= \langle \varepsilon_2(t) \varepsilon_3^*(t') \rangle = \langle \varepsilon_1(t) \varepsilon_3(t') \rangle = \\ &= \langle \varepsilon_2(t) \varepsilon_3(t') \rangle = 0 \end{aligned} \quad (\text{III.17})$$

III.4.2. ESPERANCE MATHEMATIQUE DU SIGNAL

a) Expression formelle

L'expression formelle de l'énergie emportée par le signal dans les directions \vec{k}_e et \vec{k}'_e est donnée par l'équation (III.4). L'espérance mathématique de ces expressions se simplifie en notant que le champ $\chi_3(t)$ est décorrélié des

champs χ_1 et χ_2 et que le temps de corrélation τ_c est plus court que tous les temps caractéristiques mis en jeu. On obtient :

$$\begin{aligned} \langle W_{\vec{k}_e}^{\vec{k}} \rangle &\propto \int_0^\infty d\tau \int d^3v \int d^3v' \langle \hat{n}_{ab}^*(1; \vec{v}) \hat{n}_{ab}(1; \vec{v}') \rangle e^{-i\vec{k}_3(\vec{v}-\vec{v}')\tau} \\ \langle W_{\vec{k}_e}^{\vec{k}'} \rangle &\propto \int_0^\infty d\tau \int d^3v \int d^3v' \langle \hat{n}_{ab}^*(-1; \vec{v}) \hat{n}_{ab}(-1; \vec{v}') \rangle e^{-i\vec{k}_3(\vec{v}-\vec{v}')\tau} \end{aligned} \quad (\text{III.18})$$

Une forme plus explicite du signal ne peut être obtenue qu'au prix de la détermination des composantes de Fourier $\hat{n}_{ab}(\pm 1, \vec{v})$. Nous examinons dans le chapitre IV le calcul de ces composantes en champ intense. Dans le présent chapitre nous obtenons $\langle W_{\vec{k}_e}^{\vec{k}} \rangle$ et $\langle W_{\vec{k}_e}^{\vec{k}'} \rangle$ dans la limite des champs faibles ($\theta_1 \ll 1, \theta_2 \ll 1$).

b) Espérance mathématique à la limite des champs faibles

L'expression de $\hat{n}_{ab}(\pm 1; \vec{v})$ dans la limite des champs faibles est donnée par l'équation (III.11). En utilisant la propriété de factorisation des processus gaussiens (équation III.16) on obtient finalement (appendice A)

$$\langle W_{\vec{k}}^{\vec{k}} \rangle \propto \int_{\varepsilon t_{12}}^\infty d\tau \left\{ k \left| \hat{n}_{ab}^{\nu_0}(k\tau) \right|^2 + h(\tau) \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} dv_z \left(n_{ab}^{(0)}(v_z) \right)^2}{\left(\int_{-\infty}^{+\infty} dt \left| \chi_1^0(t) \right|^2 \right)^2} \right\} \quad (\text{III.19})$$

où $\varepsilon = 1$ pour $\vec{k} = \vec{k}_e$, $\varepsilon = -1$ pour $\vec{k} = \vec{k}'_e$ et :

$$\hat{n}_{ab}^{\nu_0}(k\tau) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int dv_z n_{ab}(v_z) \exp ikv_z\tau \quad (\text{III.20})$$

$$h(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \left| \chi_1^0(t) \right|^2 \left| \chi_1^0(t-\tau) \right|^2 \quad (\text{III.21})$$

L'allure de la fonction $\langle W_{\vec{k}_e}^{\vec{k}} \rangle$ est représentée sur la figure III.1 dans le cas où $n_{ab}^{(0)}(v_z)$ est une distribution de Maxwell Boltzmann dont la vitesse quadratique moyenne est désignée par $\langle v \rangle$.

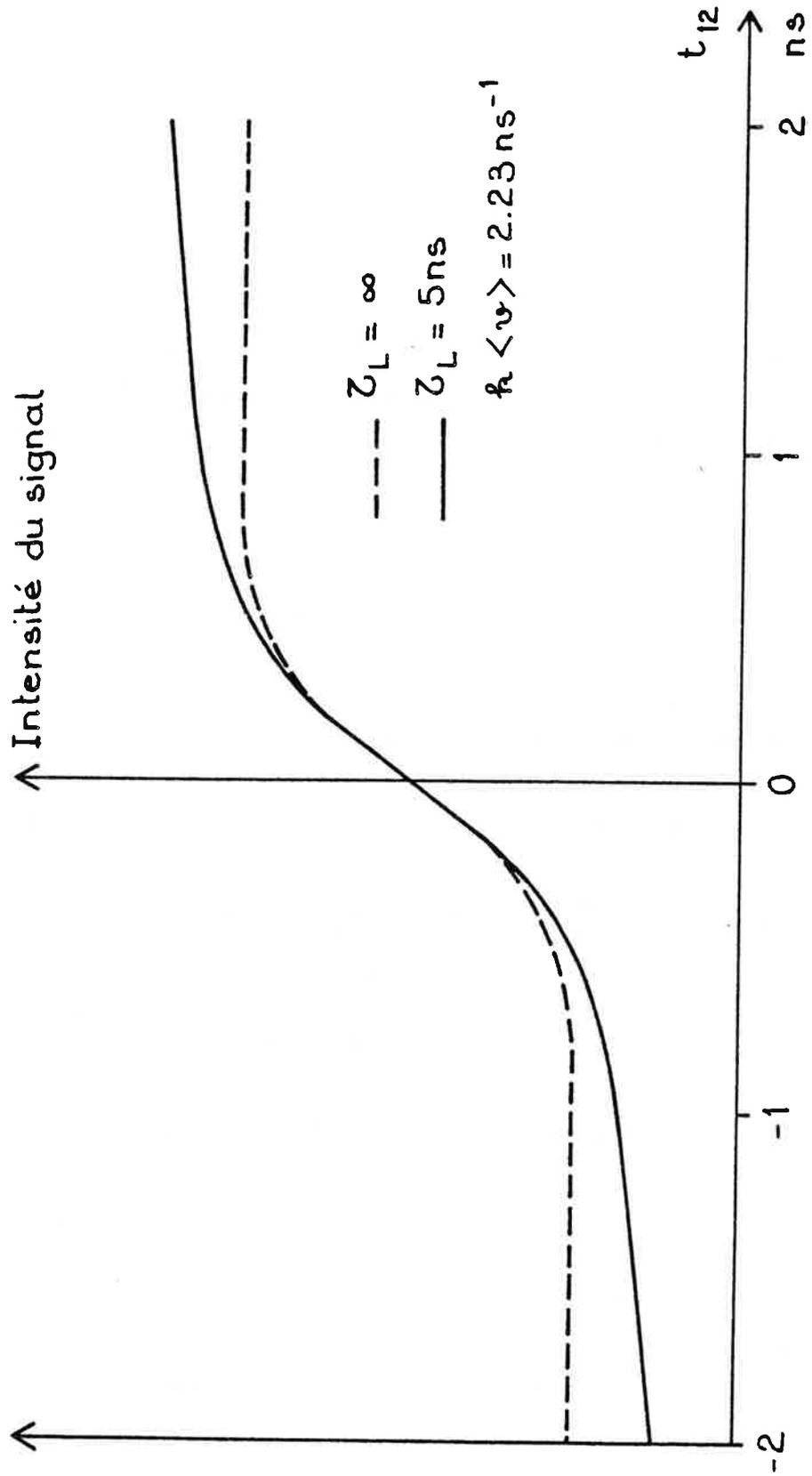


Figure III.1

Dans la direction \vec{k}_e , l'énergie émise sous forme d'écho stimulé se compose de deux termes. Lorsque l'intervalle de temps entre les deux premières impulsions change de signe, passant de $t_{12} > 0$ à $t_{12} < 0$, la contribution du premier terme disparaît sur un domaine de variation de t_{12} de l'ordre de $(k\bar{v})^{-1}$. En revanche la disparition du deuxième terme s'opère sur un domaine de variation de t_{12} de l'ordre de τ_L . Le premier terme est la signature d'une excitation cohérente de la distribution de vitesse sur toute sa largeur. Il est cependant accompagné par un second terme dont la variation en fonction de t_{12} est caractéristique des échos stimulés formés par des impulsions de durée τ_L mutuellement incohérentes. Les contributions de ces deux termes sont égales lorsque $|t_{12}| \gg \tau_L$ et lorsque $t_{12} = 0$.

L'origine de ces deux termes est localisée dans l'expression $\langle \hat{n}_{ab}(\pm 1; \vec{v}) \hat{n}_{ab}^*(\pm 1, \vec{v}') \rangle$ qui apparaît dans l'équation (III.18) et dont le développement fait apparaître (cf. équation III.7) l'espérance mathématique suivante :

$$\langle \chi_1^*(t) \chi_2(t') \chi_1(t'') \chi_2^*(t''') \rangle$$

Dans l'hypothèse d'un processus gaussien, cette expression s'écrit :

$$\begin{aligned} & \langle \chi_1^*(t) \chi_2(t') \rangle \langle \chi_1(t'') \chi_2^*(t''') \rangle \\ & + \langle \chi_1^*(t) \chi_1(t'') \rangle \langle \chi_2(t') \chi_2^*(t''') \rangle \end{aligned}$$

Le premier terme de ce développement met en jeu la corrélation entre les deux premières impulsions. C'est lui qui est responsable de la première composante de l'expression de $\langle W_k \rangle$. Le second terme du développement ne couple pas entre eux les champs associés à des impulsions différentes. Il n'est donc pas sensible à la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions. Ce terme est responsable de la seconde composante de l'expression de $\langle W_k \rangle$. D'après les propriétés de la fonction d'autocorrélation, et la relation de cohérence entre les deux premières impulsions (équation III.8), le terme corrélé $\langle \chi_1^*(t) \chi_2(t') \rangle \langle \chi_1(t'') \chi_2^*(t''') \rangle$ contribue au signal à condition que les temps t, t', t'', t''' vérifient :

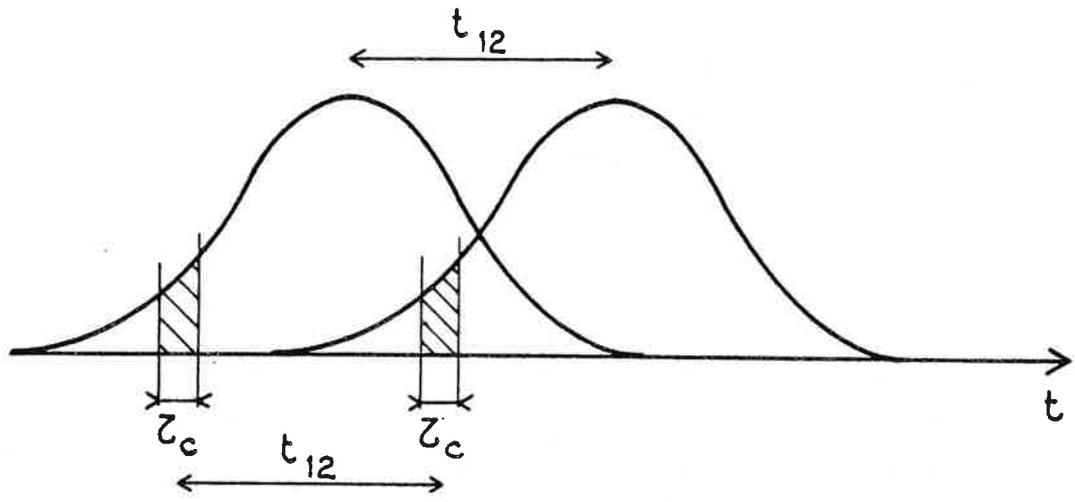


Figure III.2

$$|t-t'-t_{12}| \lesssim \tau_c \text{ et } |t''-t'''-t_{12}| \lesssim \tau_c$$

Le signal peut donc être considéré comme la résultante de signaux élémentaires produits par les $\tau_c^{-1} \tau_L$ couples d'impulsions élémentaires de durées τ_c distantes de t_{12} dont se composent les deux premières impulsions (figure III.2). L'intervalle t_{12} entre ces impulsions élémentaires est défini avec une résolution τ_c qui indique donc la limite de résolution temporelle de l'expérience. Le terme non corrélé $\langle \chi_1^*(t) \chi_1(t'') \rangle \langle \chi_2(t') \chi_2^*(t''') \rangle$ contribue au signal à condition que $|t''-t| \lesssim \tau_c$ et $|t'''-t'| \lesssim \tau_c$. Une impulsion élémentaire extraite de la première impulsion participe au signal en se couplant à n'importe quelle impulsion élémentaire extraite de la seconde impulsion. La résolution temporelle se trouve ainsi fixée à τ_L dans cette composante du signal. Une représentation dans l'espace des fréquences, complémentaire de cette représentation dans le temps, est présentée dans l'appendice A.

III.5. CONCLUSION

Nous avons obtenu, dans la limite des champs faibles, l'expression du signal d'écho de photon stimulé formé dans un gaz par une séquence de trois impulsions. Plusieurs hypothèses spécifient le problème. Les vecteurs d'onde $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3$ des impulsions excitatrices sont tels que $\vec{k}_1 = \vec{k}_3$ et $(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \approx \text{mrad}$. Les deux premières impulsions sont cohérentes entre elles. La largeur \bar{v} de la distribution de vitesse, la durée τ_L des impulsions excitatrices, le temps d'auto-corrélation τ_c satisfont les conditions $\tau_c \ll (k\bar{v})^{-1} \ll \tau_L$.

Lorsque l'intervalle t_{12} entre les deux premières impulsions change de signe, la direction d'émission de l'écho bascule de $\vec{k}_e = \vec{k}_2$ à $\vec{k}'_e = 2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$. La moyenne statis-

tique d'un grand nombre de réalisations du signal d'écho est formée de deux composantes. Le temps de basculement de l'une d'elles est τ_L . Celui de l'autre composante est $(k\bar{v})^{-1}$. La variation de l'intensité de cette dernière composante dans la direction \vec{k}_e en fonction de t_{12} est étroitement liée à la transformée de Fourier de la distribution de vitesse atomique. Cette dernière composante est due à la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions. Son temps de basculement est la signature de l'excitation cohérente de la distribution de vitesse sur toute sa largeur.

IV. EQUATIONS DE BLOCH A COEFFICIENTS ALEATOIRES

SECTION IV

EQUATIONS DE BLOCH A COEFFICIENTS ALEATOIRES

IV.1. INTRODUCTION

Dans le chapitre précédent nous avons établi l'expression du signal d'écho de photon stimulé en fonction de la différence des populations des niveaux a et b, telle qu'elle résulte de l'interaction du système atomique avec les deux premières impulsions excitatrices. Nous avons obtenu le premier terme du développement perturbatif de cette différence de population que nous avons reporté dans l'expression du signal. Dans ce chapitre nous examinons le problème de l'excitation en champ intense.

L'évolution du système atomique est gouvernée par l'équation de Bloch (équation II.18) qui, en l'absence de relaxation, se réduit à :

$$\frac{dB}{dt} = M B \quad (\text{IV.1})$$

où

$$M = \begin{bmatrix} 0 & \Delta & \frac{\chi^* - \chi}{2i} \\ -\Delta & 0 & -\left(\frac{\chi + \chi^*}{2}\right) \\ \frac{\chi - \chi^*}{2i} & \frac{\chi + \chi^*}{2} & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{IV.2})$$

et où $B(t) = \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix}$

Dans cette équation χ est une fonction du temps, aléatoire en phase et en amplitude. L'équation de Bloch est de la forme de l'équation différentielle linéaire

$$\frac{dX}{dt} = A(t) X \quad (\text{IV.3})$$

où $A(t)$ est un opérateur linéaire antisymétrique à coefficients aléatoires.

Cette équation n'admet pas de solution générale. Plus précisément on ne sait pas déterminer, pour une réalisation particulière de la variable aléatoire $\chi(t)$, une expression analytique simple de l'opérateur d'évolution du vecteur $B(t)$. Une activité importante s'est déployée au cours de ces dernières années pour déterminer, à défaut du vecteur aléatoire $B(t)$ lui-même, l'expression de ses moments statistiques [30-36]. Après avoir examiné la résolution de l'équation (IV.1) pour une réalisation donnée de $\chi(t)$ (paragraphe IV.2, .3) nous envisageons la recherche de la solution en moyenne statistique (paragraphe IV.4,.5). Nous montrons alors que les hypothèses habituellement retenues [30-36] ne s'appliquent pas à notre problème. Nous obtenons cependant deux expressions approchées de la différence de population n_{ab} à partir desquelles nous calculons, dans le chapitre V, l'expression du signal d'écho de photon stimulé.

IV.2. CAS D'UN CHAMP $\chi(t)$ REEL, AVEC $\Delta\tau_L \ll 1$

Lorsque $\chi(t)$ est réel, la matrice $M(t)$ se réduit à :

$$\begin{bmatrix} 0 & \Delta & 0 \\ -\Delta & 0 & -\chi \\ 0 & \chi & 0 \end{bmatrix}$$

Si, de plus, le désaccord de fréquence Δ est très inférieur à l'inverse de la durée τ_L de l'impulsion décrite par $\chi(t)$, alors l'équation (IV.1) est exactement soluble, et la solution s'écrit :

$$\begin{cases} n_{ab}(v, t) = n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \cos \theta \\ \rho_{ab}(v, t) = \frac{i}{2} n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) e^{i\Delta t} \sin \theta \end{cases} \quad (\text{IV.4})$$

où $\theta = \int_{-\infty}^t dt_1 \chi(t_1)$ et où la condition initiale est

$$B(-\infty) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \end{pmatrix} \quad (\text{IV.5})$$

La solution obtenue est elle-même une fonction aléatoire du temps. Cette solution dépend de l'aire de l'impulsion mais non de sa forme. Ainsi, l'excitation produite par une succession d'impulsions est-elle identique à l'excitation produite par une impulsion unique de même aire. Le résultat de l'excitation est indépendant de l'intervalle entre les impulsions. Il faut cependant noter que lors de l'excitation par une séquence d'impulsions, la quantité τ_L désigne la durée totale de la séquence et doit vérifier $\Delta\tau_L \ll 1$.

IV.3. CAS D'UN CHAMP $\chi(t)$ COMPLEXE

IV.3.1. SOLUTION FORMELLE. DEVELOPPEMENT DE MAGNUS

Par la transformation $\tilde{\rho}_{ab}(t) = r_{ab}(t)\exp i\Delta t$, l'équation (IV.1) se met sous la forme :

$$\frac{d}{dt} C(t) = M'(t) C(t) \quad (\text{IV.6})$$

$$\text{où } C(t) = \begin{pmatrix} r_{ab} + r_{ba} \\ i(r_{ab} - r_{ba}) \\ n_{ab} \end{pmatrix} \quad (\text{IV.7})$$

$$\text{et où } M'(t) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & -\text{Im}(\chi \exp -i\Delta t) \\ 0 & 0 & -\text{Re}(\chi \exp -i\Delta t) \\ \text{Im}(\chi \exp -i\Delta t) & \text{Re}(\chi \exp -i\Delta t) & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{IV.8})$$

La solution formelle de cette équation s'écrit :

$$C(t) = T \left[\exp \int_{-\infty}^t M'(t') dt' \right] C(-\infty) \quad (\text{IV.9})$$

où T désigne l'opérateur chronologique de Dyson [37]. Cette solution s'écrit de façon équivalente :

$$C(t) = \left[1 + \sum_{n=1}^{\infty} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} dt_n M'(t_1) M'(t_2) \dots M'(t_n) \right] C(-\infty) \quad (\text{IV.10})$$

Il est possible de mettre la solution sous la forme d'une véritable exponentielle à l'aide du développement de Magnus [38] :

$$C(t) = \exp A(t) C(-\infty) \quad (\text{IV.11})$$

$$\text{où : } A(t) = A^{(1)}(t) + A^{(2)}(t) + \dots \quad (\text{IV.12})$$

$$A^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^t dt_1 M'(t_1) \quad (\text{IV.13})$$

$$A^{(2)}(t) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 [M'(t_1), M'(t_2)] \quad (\text{IV.14})$$

$$A^{(3)}(t) = \frac{1}{6} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_3 \left\{ \left[[M'(t_1), M'(t_2)], M'(t_3) \right] + \left[[M'(t_3), M'(t_2)], M'(t_1) \right] \right\} \quad (\text{IV.15})$$

.....

Les opérateurs $A^{(n)}(t)$ sont antisymétriques. Il s'ensuit que l'opérateur $U(t) = \exp A(t)$ est orthogonal. La norme du vecteur $C(t)$ est donc conservée au cours de son évolution. L'extrémité du vecteur $C(t)$ se déplace sur une sphère de rayon constant $\|C(-\infty)\| = n_{ab}^{(0)}(\vec{v})$. La variation de $n_{ab}(\vec{v}, t)$ au cours du temps résulte du déplacement de ce vecteur $C(t)$ et non de la variation de sa norme. Parmi les solutions approchées à l'équation (IV.6) nous devons écarter celles qui, modifiant la norme, masquent, par une relaxation parasite, l'origine véritable de la relaxation de $n_{ab}(\vec{v}, t)$.

IV.3.2. SOLUTION AU PREMIER ORDRE DU DEVELOPPEMENT
DE MAGNUS

Les matrices $A^{(n)}(t)$ du développement de Magnus étant toutes antisymétriques, l'opérateur $\exp \sum_{n=1}^N A^{(n)}(t)$ reste unitaire à tous les ordres N de troncature. Au premier ordre de troncature du développement, l'opérateur d'évolution $U(t) = \exp A(t)$ se réduit à :

$$U^{(1)}(t) = \exp A^{(1)}(t) \quad (\text{IV.16})$$

L'opérateur $A^{(1)}(t)$ se diagonalise sous la forme :

$$A^{(1)}(t) = N^+(t) D(t) N(t) \quad (\text{IV.17})$$

où $D(t)$ est une matrice diagonale à coefficients imaginaires et $N(t)$ est une matrice unitaire. Par substitution de (IV.17) dans (IV.16) on obtient :

$$U^{(1)}(t) = N^+(t) [\exp D(t)] N(t) \quad (\text{IV.18})$$

On trouve finalement :

$$C(t) = n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \begin{bmatrix} \frac{\text{Re } I(\Delta, t)}{|I(\Delta, t)|} \sin |I(\Delta, t)| \\ \frac{\text{Im } I(\Delta, t)}{|I(\Delta, t)|} \sin |I(\Delta, t)| \\ \cos |I(\Delta, t)| \end{bmatrix} \quad (\text{IV.19})$$

$$\text{où } I(\Delta, t) = \int_{-\infty}^t dt_1 \chi(t_1) \exp -i\Delta t_1 \quad (\text{IV.20})$$

Lorsque $\chi(t)$ est réel, avec $\Delta\tau_L \ll 1$, on a :

$$[M'(t_1), M'(t_2)] \approx 0$$

Le développement de Magnus se réduit alors exactement à son premier terme et la solution donnée par l'équation (IV.19) est solution exacte de l'équation (IV.6). La quantité $I(\Delta, \infty)$ représente la composante spectrale de l'impulsion lumineuse qui excite à résonance les atomes dont la vitesse axiale appartient à l'intervalle de largeur λ/τ_L centré en $v_z = \Delta/k$. Selon l'équation (IV.19) la distribution de vitesse se décompose en tranches de largeur λ/τ_L et tout se

pas comme si chaque tranche était excitée à résonance par une impulsion élémentaire monochromatique de durée τ_L et d'aire $|I(\Delta, \infty)|$. On reconnaît là une image récemment proposée pour la description du mélange à quatre ondes en lumière incohérente [39].

IV.4. EQUATION INTEGRODIFFERENTIELLE DE n_{ab} ET APPROXIMATION DE "GRAIN GROSSIER"

Par combinaison des équations différentielles qui composent le système (IV.6), on obtient une équation intégrodifférentielle satisfaite par n_{ab} :

$$\frac{d}{dt} n_{ab}(\vec{v}, t) = -\frac{1}{2} \int_0^{\infty} d\tau e^{i\Delta\tau} \chi^*(t) \chi(t-\tau) n_{ab}(\vec{v}, t-\tau) + C.C. \quad (IV.21)$$

L'approximation du grain grossier consiste à identifier n_{ab} avec sa moyenne temporelle effectuée sur un intervalle T petit devant son temps caractéristique d'évolution mais grand devant celui des coefficients rapidement fluctuants $\chi(t)$. Le temps caractéristique d'évolution de n_{ab} est désigné par τ_e . Nous essaierons de préciser sa valeur après traitement de l'équation (IV.21). Le temps d'évolution de $\chi(t)$ est τ_c . Nous supposons qu'il existe T tel que :

$$\tau_c \ll T \ll \tau_e \quad (IV.22)$$

Alors on a :

$$n_{ab}(\vec{v}, t) \approx \frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} dt_1 n_{ab}(\vec{v}, t_1) \quad (IV.23)$$

et

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} n_{ab}(\vec{v}, t) \approx & -\frac{1}{2} \int_0^{\infty} d\tau e^{i\Delta\tau} n_{ab}(\vec{v}, t-\tau) \chi^0(t) \chi^0(t-\tau) \frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} dt_1 \times \\ & \times \varepsilon^*(t_1) \varepsilon(t_1-\tau) + C.C. \end{aligned} \quad (IV.24)$$

L'hypothèse ergodique identifie la moyenne temporelle d'une fonction aléatoire sur un intervalle de temps infini avec son espérance mathématique [40] :

$$\frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} dt_1 \varepsilon^*(t_1) \varepsilon(t_1 - \tau) = \langle \varepsilon^*(t) \varepsilon(t - \tau) \rangle + \psi_T(\tau), \quad (\text{IV.25})$$

avec $\lim_{T \rightarrow \infty} \psi_T(\tau) = 0$ et $\langle \psi_T(\tau) \rangle = 0$

La condition $T \gg \tau_c$ semble autoriser à négliger la contribution de la fonction aléatoire $\psi_T(\tau)$ dans l'équation (IV.25). Afin de préciser l'importance de $\psi_T(\tau)$, nous considérons le cas modèle du télégraphe aléatoire à deux valeurs. Le temps est divisé en intervalles de durée τ_c . Au terme de chaque intervalle la fonction $\varepsilon(t)$ est tirée au sort entre les valeurs +1 et -1. On peut alors écrire :

$$\frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} dt' \varepsilon(t') \varepsilon^*(t' - \tau) = \frac{\tau_c}{T} \sum_{i=1}^{T/\tau_c} \varepsilon(t_i) \varepsilon^*(t_i - \tau) \quad (\text{IV.26})$$

Pour $\tau > \tau_c$ on a :

$$\frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} dt' \langle \varepsilon(t') \varepsilon^*(t' - \tau) \rangle = 0 \quad (\text{IV.27})$$

et

$$\frac{1}{T} \left\langle \left[\int_{t-T/2}^{t+T/2} dt' \varepsilon(t') \varepsilon^*(t' - \tau) \right]^2 \right\rangle = \frac{\tau_c^2}{T} \sum_{i=1}^{T/\tau_c} \langle \varepsilon(t_i) \varepsilon^*(t_i) \rangle \times \times \langle \varepsilon(t_i - \tau) \varepsilon^*(t_i - \tau) \rangle = \tau_c \quad (\text{IV.28})$$

On en déduit que $\langle |\psi_T(\tau)|^2 \rangle \approx \frac{\tau_c}{T}$. Ce résultat semble légitimer l'identification de l'espérance mathématique à la moyenne temporelle lorsque $T \gg \tau_c$. Cependant la moyenne temporelle de $\varepsilon(t) \varepsilon^*(t - \tau)$ est impliquée dans l'intégration sur τ dans l'équation (IV.24). Substituant l'équation (IV.25) dans l'équation (IV.24), on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} n_{ab}(\vec{v}, t) &= -\frac{1}{2} \int_0^\infty d\tau e^{i\Delta\tau} n_{ab}(\vec{v}, t - \tau) [\chi^0(t)]^2 \langle \varepsilon^*(t) \varepsilon(t - \tau) \rangle + \text{C.C.} \\ &\quad - \frac{1}{2} \int_0^\infty d\tau e^{i\Delta\tau} n_{ab}(\vec{v}, t - \tau) \chi^0(t) \chi^0(t - \tau) \psi_T(\tau) + \text{C.C.} \end{aligned} \quad (\text{IV.29})$$

Dans le premier terme, le domaine d'intégration est délimité par la largeur τ_c de la fonction d'autocorrélation. L'ordre de grandeur de ce premier terme est donc :

$\frac{1}{2} n_{ab}(t) [\chi^0(t)]^2 \tau_c$. Dans le deuxième terme le domaine d'intégration est délimité par la largeur τ_L de $\chi^0(t - \tau)$. L'ordre de grandeur de ce terme est précisé par le calcul de :

$$\left\langle \left| \int_0^{\tau_L} d\tau \psi_T(\tau) \right|^2 \right\rangle \approx \frac{\tau_L}{\tau_c} \times \tau_c^2 \left\langle |\psi_T(\tau)|^2 \right\rangle = \tau_c^2 \times \frac{\tau_L}{T} \quad (\text{IV.30})$$

L'ordre de grandeur du deuxième terme est donc $\sqrt{\frac{\tau_L}{T}}$ fois supérieur à celui du premier. La contribution de $\psi_T(\tau)$ dans l'équation (IV.24) ne peut donc pas être négligée. Le faible écart entre la moyenne temporelle et l'espérance mathématique de $\varepsilon(t)\varepsilon^*(t-\tau)$ est amplifié par l'intégration sur τ . Le temps caractéristique d'évolution τ_e de n_{ab} , tel qu'il résulte de la détermination de l'ordre de grandeur de $dn_{ab}(\vec{v}, t)/dt$, est donc :

$$\tau_e \approx [\chi^0(t)]^{-2} \tau_c^{-1} \sqrt{\frac{T}{\tau_L}} \quad (\text{IV.31})$$

La condition d'existence de T s'écrit :

$$\tau_c \ll T \ll [\chi^0(t)]^{-2} \tau_c^{-1} \sqrt{\frac{T}{\tau_L}} \quad (\text{IV.32})$$

$$\text{soit encore } \begin{cases} \tau_c \ll T \\ [\chi^0(t)]^2 \tau_c \tau_L \ll \sqrt{\frac{\tau_L}{T}} \end{cases} \quad (\text{IV.33})$$

Ces conditions peuvent être satisfaites par T, mais l'approximation de grain grossier ne nous permet pas de progresser dans la résolution de l'équation (IV.21) où subsiste un terme aléatoire important provenant de $\psi_T(\tau)$.

L'intervalle T sur lequel s'effectue la moyenne de $\varepsilon(t)\varepsilon^*(t-\tau)$ n'est pas assez grand pour autoriser l'hypothèse ergodique. En revanche l'hypothèse ergodique s'appliquerait à une moyenne temporelle effectuée sur un domaine de largeur T très supérieure à l'intervalle entre deux impulsions successives.

IV.5. APPROCHE STATISTIQUE

IV.5.1. INTRODUCTION

Nous avons cherché dans les paragraphes précédents à déterminer la différence de population des niveaux $n_{ab}(\vec{v}, t)$ par résolution directe de l'équation de Bloch. Cependant, d'après l'équation (III.18), le calcul du signal d'écho stimulé requiert seulement la connaissance d'un moment d'ordre 2 de la différence des populations. Une approche statistique, substituant à l'équation de Bloch, les équations satisfaites par les moments du vecteur $B(\vec{r}, \vec{v}, t)$ semble adaptée au problème.

IV.5.2. EQUATION DE BOURRET [34]

- a) Fonction d'autocorrélation du champ centrée en $\tau = 0$ et de largeur τ_c

Le vecteur $C(t)$ défini par l'équation (IV.7) obéit à l'équation d'évolution :

$$C(t) = U(t, t') C(t') \quad (\text{IV.34})$$

où l'opérateur d'évolution $U(t, t')$ est solution de l'équation :

$$\frac{dU(t, t')}{dt} = M'(t) U(t, t') \quad (\text{IV.35})$$

Dans l'hypothèse où $\chi(t)$ est une fonction aléatoire centrée associée à un processus gaussien, l'espérance mathématique de $U(t) = U(t, -\infty)$, déduite de la solution formelle de l'équation (IV.35) s'écrit :

$$\langle U(t) \rangle = 1 + \sum_{i=1}^{\infty} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{2i-1}} dt_{2i} \langle M'(t_1) M'(t_2) \dots M'(t_{2i}) \rangle \quad (\text{IV.36})$$

Par dérivation on obtient :

$$\frac{d}{dt}\langle U(t) \rangle = \int_{-\infty}^t dt_1 \langle M'(t)M'(t_1)U(t_1) \rangle \quad (\text{IV.37})$$

Nous supposons que la fonction d'autocorrélation du champ excitateur est centrée en $\tau = 0$ et que sa largeur est τ_c . On en déduit que :

$$\langle M'(t_1)M'(t_2) \rangle = 0 \text{ si } |t_2 - t_1| \gg \tau_c \quad (\text{IV.38})$$

Compte tenu de l'expression (IV.36), l'équation (IV.38) conduit à :

$$\langle M'(t_1)U(t_2) \rangle = 0 \text{ si } |t_1 - t_2| \gg \tau_c \quad (\text{IV.39})$$

Pour tirer parti de cette décorrélation nous écrivons l'opérateur d'évolution sous la forme [41] :

$$U(t_1) = U(t_1, t_1 - \delta t)U(t_1 - \delta t) \quad (\text{IV.40})$$

et nous supposons qu'il est possible de trouver δt qui vérifie simultanément les conditions

$$\begin{cases} \chi^0 \delta t \ll 1 \\ \delta t \gg \tau_c \end{cases} \quad (\text{IV.41})$$

Suivant la première condition :

$$U(t_1, t_1 - \delta t) \approx 1 \quad (\text{IV.42})$$

La deuxième condition, conduit, d'après l'équation (IV.39), à :

$$\langle M'(t_1)U(t_1 - \delta t) \rangle = 0 \quad (\text{IV.43})$$

L'opérateur d'évolution $U(t_1 - \delta t)$ étant ainsi décorrélé de l'opérateur $M'(t_1)$ on obtient finalement

$$\begin{aligned} \langle M'(t)M'(t_1)U(t_1) \rangle &= \langle M'(t)M'(t_1)U(t_1 - \delta t) \rangle \\ &= \langle M'(t)M'(t_1) \rangle \langle U(t_1 - \delta t) \rangle \\ &= \langle M'(t)M'(t_1) \rangle \langle U(t_1) \rangle \end{aligned} \quad (\text{IV.44})$$

L'équation (IV.37) devient donc :

$$\frac{d}{dt}\langle U(t) \rangle = \int_0^{\infty} d\tau \langle M'(t)M'(t-\tau) \rangle \langle U(t-\tau) \rangle \quad (\text{IV.45})$$

Enfin, l'équation (IV.38) indique que seule la région $\tau \lesssim \tau_c$ contribue à l'intégration sur τ . Comme par ailleurs $\chi^0 \tau_c \ll 1$ (équation IV.41), il s'ensuit que :

$$\langle U(t-\tau) \rangle \approx \langle U(t) \rangle \quad (\text{IV.46})$$

Nous obtenons la forme finale de l'équation d'évolution de $\langle U(t) \rangle$, établie initialement par Bourret [34]

$$\frac{d}{dt} \langle U(t) \rangle = \int_0^{\infty} d\tau \langle M'(t) M'(t-\tau) \rangle \langle U(t) \rangle \quad (\text{IV.47})$$

La démarche suivie pour établir cette équation consiste à découper l'axe des temps en intervalles de largeur δt statistiquement indépendants les uns des autres. A cette échelle de temps le processus aléatoire prend un caractère Markovien [36]. D'autres approches ont été adoptées pour déterminer $\langle U(t) \rangle$ [30-33]. Toutes reposent sur l'hypothèse d'absence de corrélation à long terme dans le champ exciteur. Le paragraphe suivant précise les limites de validité de l'équation de Bourret lorsque cette hypothèse est mise en défaut.

b) Fonction d'autocorrélation du champ à trois pics de largeur τ_c centrés en $\tau = 0$ et en $|\tau| = |t_{12}|$

La condition de validité de l'équation de Bourret, $\chi^0 \tau_c \ll \chi^0 \delta t \ll 1$, exige que le système atomique n'évolue pas sous l'effet du champ exciteur tant que le processus aléatoire garde mémoire d'un état antérieur. Si la fonction d'autocorrélation du champ présente un pic au point $\tau = t_{12}$, la mémoire du processus est maintenue pendant un intervalle de temps t_{12} et la condition de validité de l'approximation de Bourret se change en $\chi^0 t_{12} \ll \chi^0 \delta t \ll 1$. Ce raisonnement qualitatif ignore cependant la forme particulière de la fonction d'autocorrélation envisagée. Celle-ci présente trois pics de largeur τ_c , l'un centré en $\tau = 0$, les autres en $|\tau| = |t_{12}|$. La condition de validité obtenue vaudrait plutôt dans le cas d'une fonction d'autocorrélation à un pic de largeur t_{12} centré en $\tau = 0$. Nous précisons cette condition dans le cas limite d'un champ $\chi(t)$ réel avec désaccord $\Delta = 0$.

Dans ce cas, l'équation de Bloch se résoud exactement et on trouve :

$$U(t) = \exp \int_{-\infty}^t \chi(t_1) dt_1 N \quad (\text{IV.48})$$

où

$$N = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & -1 & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{IV.49})$$

L'équation (IV.37) s'écrit :

$$\frac{d}{dt} \langle U(t) \rangle = \int_{-\infty}^t dt_1 \langle M'(t) M(t_1) \rangle \langle U(t) \rangle + \int_{-\infty}^t dt_1 R(t, t_1) \quad (\text{IV.50})$$

où

$$R(t, t_1) = [\langle M'(t) M'(t_1) U(t_1) \rangle - \langle M'(t) M'(t_1) \rangle \langle U(t_1) \rangle] \quad (\text{IV.51})$$

Nous déterminons l'expression de $R(t, t_1)$ à l'aide de l'expression exacte de $U(t)$. Le premier terme de $R(t, t_1)$ se développe sous la forme :

$$\begin{aligned} \langle M(t) M(t_1) U(t_1) \rangle &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{2n!} N^{2n+2} \int_{-\infty}^t dt'_1 \int_{-\infty}^{t'_1} dt'_2 \dots \int_{-\infty}^{t'_1} dt'_{2n} \times \\ &\quad \times \langle \chi(t) \chi(t_1) \chi(t'_1) \dots \chi(t'_{2n}) \rangle \end{aligned} \quad (\text{IV.52})$$

Dans l'hypothèse d'un processus gaussien, avec $\langle \chi(t) \rangle = 0$, on obtient :

$$\begin{aligned} \langle \chi(t) \chi(t_1) \chi(t'_1) \dots \chi(t'_{2n}) \rangle &= \langle \chi(t) \chi(t_1) \rangle \langle \chi(t'_1) \dots \chi(t'_{2n}) \rangle \\ &\quad + 2n(2n-1) \langle \chi(t) \chi(t'_1) \rangle \langle \chi(t_1) \chi(t'_2) \rangle \langle \chi(t'_3) \dots \chi(t'_{2n}) \rangle \end{aligned} \quad (\text{IV.53})$$

Substituant (IV.53) dans (IV.52) on obtient :

$$R(t, t_1) = N^4 \langle \chi(t) \int_{-\infty}^{t_1} dt'_1 \chi(t'_1) \rangle \langle \chi(t_1) \int_{-\infty}^{t_1} dt'_2 \chi(t'_2) \rangle \langle U(t_1) \rangle \quad (\text{IV.54})$$

La condition de validité de l'équation de Bourret s'écrit alors :

$$\int_{-\infty}^t R(t, t_1) dt_1 \ll \int_{-\infty}^t dt_1 \langle M'(t) M(t_1) \rangle \langle U(t) \rangle \quad (\text{IV.55})$$

soit encore

$$\int_{-\infty}^t dt_1 \langle \chi(t) \int_{-\infty}^{t_1} dt'_1 \chi(t'_1) \rangle \langle \chi(t_1) \int_{-\infty}^{t_1} dt'_2 \chi(t'_2) \rangle \ll \langle \chi(t) \int_{-\infty}^t dt_1 \chi(t_1) \rangle \quad (\text{IV.56})$$

Dans l'hypothèse où le champ s'écrit :

$$\chi(t) = \chi_1(t) + \chi_1(t-t_{12}) \quad (\text{IV.57})$$

la fonction d'autocorrélation prend la forme :

$$\begin{aligned} \langle \chi(t)\chi(t-\tau) \rangle = & \left[\chi_1^0(t) \right]^2 \left(g(\tau) + g(\tau+t_{12}) \right) \\ & + \left[\chi_1^0(t-t_{12}) \right]^2 \left(g(\tau) + g(\tau-t_{12}) \right) \end{aligned} \quad (\text{IV.58})$$

En substituant cette expression dans l'équation (IV.56), on obtient finalement la condition de validité de l'équation de Bourret dans le cas d'un champ muni d'une fonction d'autocorrélation à trois pics de largeur τ_c séparés par un intervalle t_{12} :

$$(\chi^0)^2 t_{12} \tau_c \ll 1 \quad (\text{IV.59})$$

Cette condition est moins restrictive que celle obtenue plus haut par un argument qualitatif et qui exige :

$$\chi^0 t_{12} \ll 1$$

Dans la suite nous admettons que la condition de validité de l'équation de Bourret (équation IV.59) établie dans le cas particulier d'un champ réel à désaccord nul s'applique également à tout champ complexe.

Avec la condition initiale (IV.5), on déduit de l'équation (IV.47) l'équation satisfaite par $\langle n_{ab}(t) \rangle = \langle U(t) \rangle C(-\infty)$:

$$\frac{d}{dt} \langle n_{ab}(t) \rangle = -\frac{1}{2} \langle \chi(t) e^{-i\Delta t} I^*(\Delta, t) \rangle \langle n_{ab}(t) \rangle + \text{C.C.} \quad (\text{IV.60})$$

$$\text{où} \quad I(\Delta, t) = \int_{-\infty}^t dt_1 \chi(t_1) e^{-i\Delta t_1}$$

Par intégration directe on obtient :

$$\langle n_{ab}(\vec{v}, t) \rangle = n_{ab}^{(0)}(v) \exp \left[-\frac{1}{2} \langle I(\Delta, t) I^*(\Delta, t) \rangle \right] \quad (\text{IV.61})$$

L'équation de Bourret fournit l'expression de $\langle n_{ab} \rangle$, premier moment statistique de la différence des populations des niveaux. Cependant ce sont les moments d'ordre 2 qui inter-

viennent dans l'expression du signal d'écho stimulé. En l'absence d'équation équivalente à l'équation de Bourret pour ces moments d'ordre 2, nous nous proposons de déterminer une expression approchée de n_{ab} , telle que $\langle n_{ab} \rangle$ satisfasse l'équation de Bourret. On pourra extraire de cette expression de n_{ab} les composantes $\hat{n}_{ab}(\pm 1, \vec{v})$ pour en calculer les moments d'ordre 2.

IV.5.3. SOLUTION APPROCHÉE DE L'EQUATION DE BLOCH
COMPATIBLE AVEC L'EQUATION DE BOURRET

Dans le paragraphe IV.3.2, nous notons que le premier terme du développement de Magnus décrit l'excitation par une impulsion de lumière incohérente comme l'interaction résonnante de chaque classe de vitesse avec une impulsion monochromatique élémentaire d'aire $|I(\Delta, \infty)|$. Dans l'expression de n_{ab} obtenue au premier ordre du développement de Magnus l'effet du champ est complètement décrit par la fonction $|I(\Delta, t)|$. Nous adoptons cette image et nous cherchons une solution approchée de n_{ab} sous la forme :

$$n_{ab} = \left[\sum_n \alpha_n (I(\Delta, t) I^*(\Delta, t))^n \right] n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \quad (\text{IV.62})$$

Nous imposons à cette expression de satisfaire l'équation de Bourret. Par substitution de (IV.62) dans (IV.60) on obtient :

$$\begin{aligned} (n+1)\alpha_{n+1} \langle \chi e^{-i\Delta t} I^*(\Delta, t) (I(\Delta, t) I^*(\Delta, t))^n \rangle \\ = -\frac{1}{2}\alpha_n \langle \chi e^{-i\Delta t} I^*(\Delta, t) \rangle \langle (I(\Delta, t) I^*(\Delta, t))^n \rangle \end{aligned} \quad (\text{IV.63})$$

Dans l'hypothèse d'un processus gaussien, on obtient la formule de récurrence :

$$2(n+1)^2 \alpha_{n+1} = -\alpha_n \quad \text{avec} \quad \alpha_0 = 1 \quad (\text{IV.64})$$

L'équation (IV.62) s'écrit alors [42]

$$n_{ab} = n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) J_0[\sqrt{2}|I(\Delta, t)|] \quad (\text{IV.65})$$

où $J_0(x)$ est une fonction de Bessel.

Nous avons souligné au paragraphe IV.3.1 l'importance de la conservation de la norme du vecteur de Bloch au cours de son évolution. La solution obtenue dans l'équation (IV.65) ne vérifie pas cette propriété. De façon plus générale aucune solution approchée telle que $n_{ab} \approx 0$ lorsque $|I(\Delta, t)| \gg 1$ ne vérifie cette propriété. Ces solutions devraient donc être écartées. Cependant seuls sont impliqués dans le calcul du signal, les moments d'ordre 2 de n_{ab} . Donc, avant de rejeter aucune des approximations envisagées, nous comparerons dans le paragraphe suivant les valeurs de $\langle n_{ab}^2 \rangle$ auxquelles elles conduisent.

IV.5.4. COMPARAISON DES ESTIMATIONS DE $\langle n_{ab} \rangle$ ET DE $\langle n_{ab}^2 \rangle$

IV.5.4.1. Estimations de $\langle n_{ab} \rangle$

a) Equation de Bourret

L'expression de $\langle n_{ab}(\vec{v}, t) \rangle$ est donnée par l'équation (IV.61).

b) Approximation du développement de Magnus au premier ordre de troncature

A partir de l'expression (IV.19), et en notant que :

$$\langle |I(\Delta, t)|^{2n} \rangle = n! \langle |I(\Delta, t)|^2 \rangle^n$$

nous obtenons [42]

$$\langle n_{ab}(\vec{v}, t) \rangle = n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \phi\left(1, \frac{1}{2}, -\frac{\alpha}{4}\right) \quad (\text{IV.66})$$

où $\phi(\beta, \gamma, z)$ est une fonction hypergéométrique dégénérée et où $\alpha = \langle |I(\Delta, t)|^2 \rangle$. Les courbes représentatives des expressions (IV.61) et (IV.66) sont tracées sur la figure IV.1. Elles présentent toutes deux l'allure de courbes de relaxation dont le taux s'exprime simplement dans la limite où

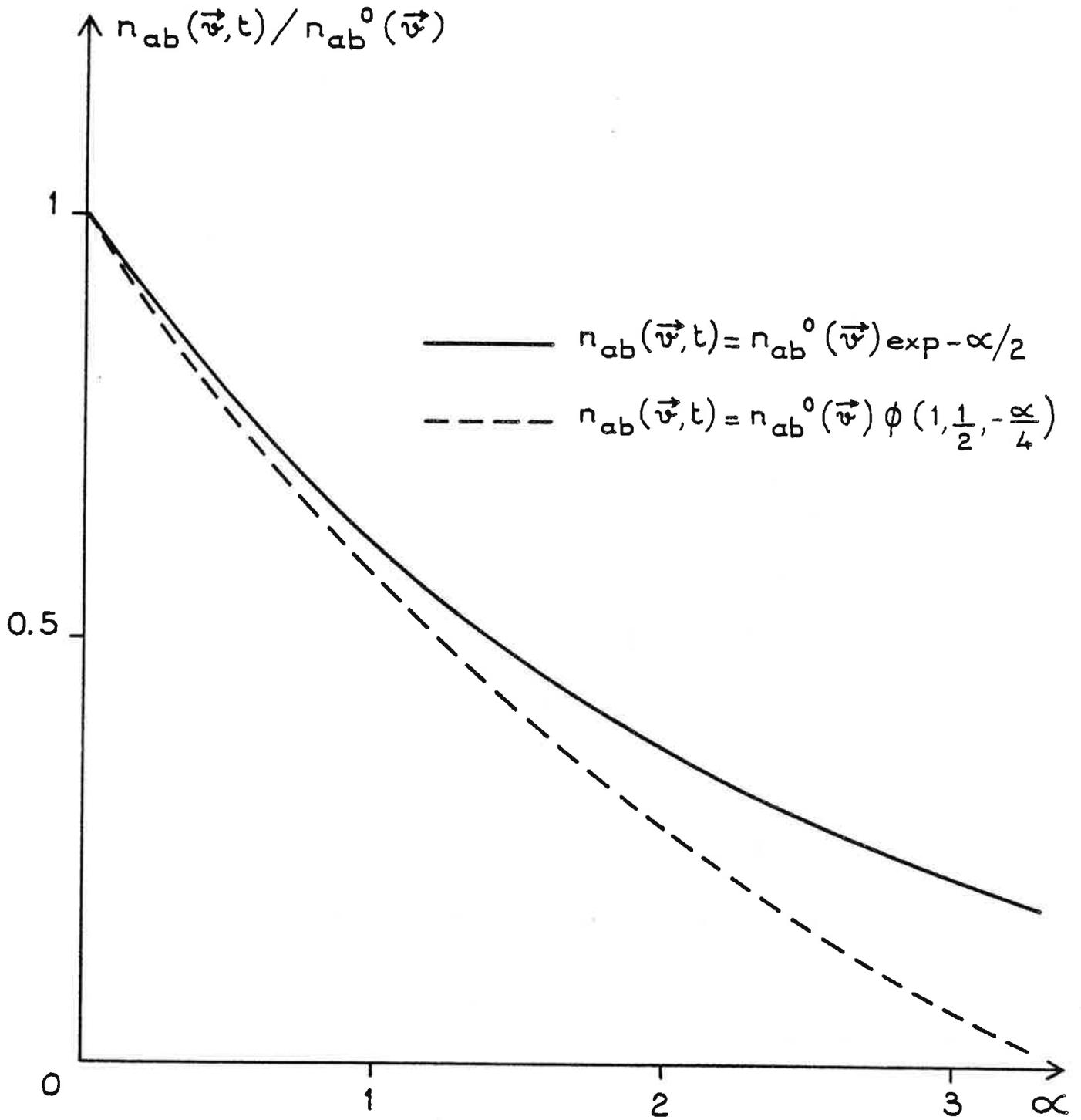


Figure IV.1

$k\bar{v}\tau_c \ll 1$. On a en effet alors :

$$\alpha = \int_{-\infty}^t dt' \gamma_s(t') \quad (\text{IV.67})$$

où
$$\gamma_s(t) = [\chi^0(t)]^2 \tau_c \quad (\text{IV.68})$$

La quantité $\gamma_s(t)$ représente le taux instantané de relaxation de la différence de population moyenne par le champ électromagnétique.

IV.5.4.2. Estimations de $\langle n_{ab}^2 \rangle$

a) Solution exacte au quatrième ordre

Nous avons noté au paragraphe IV.5.2 qu'il n'existe pas pour les moments d'ordre 2 d'équation analogue à l'équation de Bourret. A partir de l'équation (IV.21) on obtient cependant l'équation suivante :

$$\frac{d}{dt} \langle n_{ab}^2 \rangle = - \left[\langle n_{ab}(t) \chi^*(t) \int_0^\infty d\tau e^{i\Delta\tau} \chi(t-\tau) n_{ab}(t-\tau) \rangle + \text{C.C.} \right] \quad (\text{IV.69})$$

Dans l'hypothèse d'un processus gaussien, nous obtenons par itérations successives à l'ordre 4 en α

$$\langle n^2 \rangle = \left[1 - \alpha + \frac{3}{4}\alpha^2 - \frac{1}{3}\alpha^3 + \frac{5}{48}\alpha^4 + \dots \right] \quad (\text{IV.70})$$

où $n = n_{ab} / n_{ab}^{(0)}(\vec{v})$

b) Approximation du développement de Magnus au premier ordre de troncature

A partir de l'équation (IV.19) nous obtenons

[42] :

$$\begin{aligned} \langle n^2 \rangle &= \langle \cos^2 |I(\Delta, t)| \rangle = \frac{1}{2} \left(1 + \phi \left(1, \frac{1}{2}, -\alpha \right) \right) \\ &= \left(1 - \alpha + \frac{2}{3}\alpha^2 - \frac{4}{15}\alpha^3 + \frac{8}{105}\alpha^4 + \dots \right) \end{aligned} \quad (\text{IV.71})$$

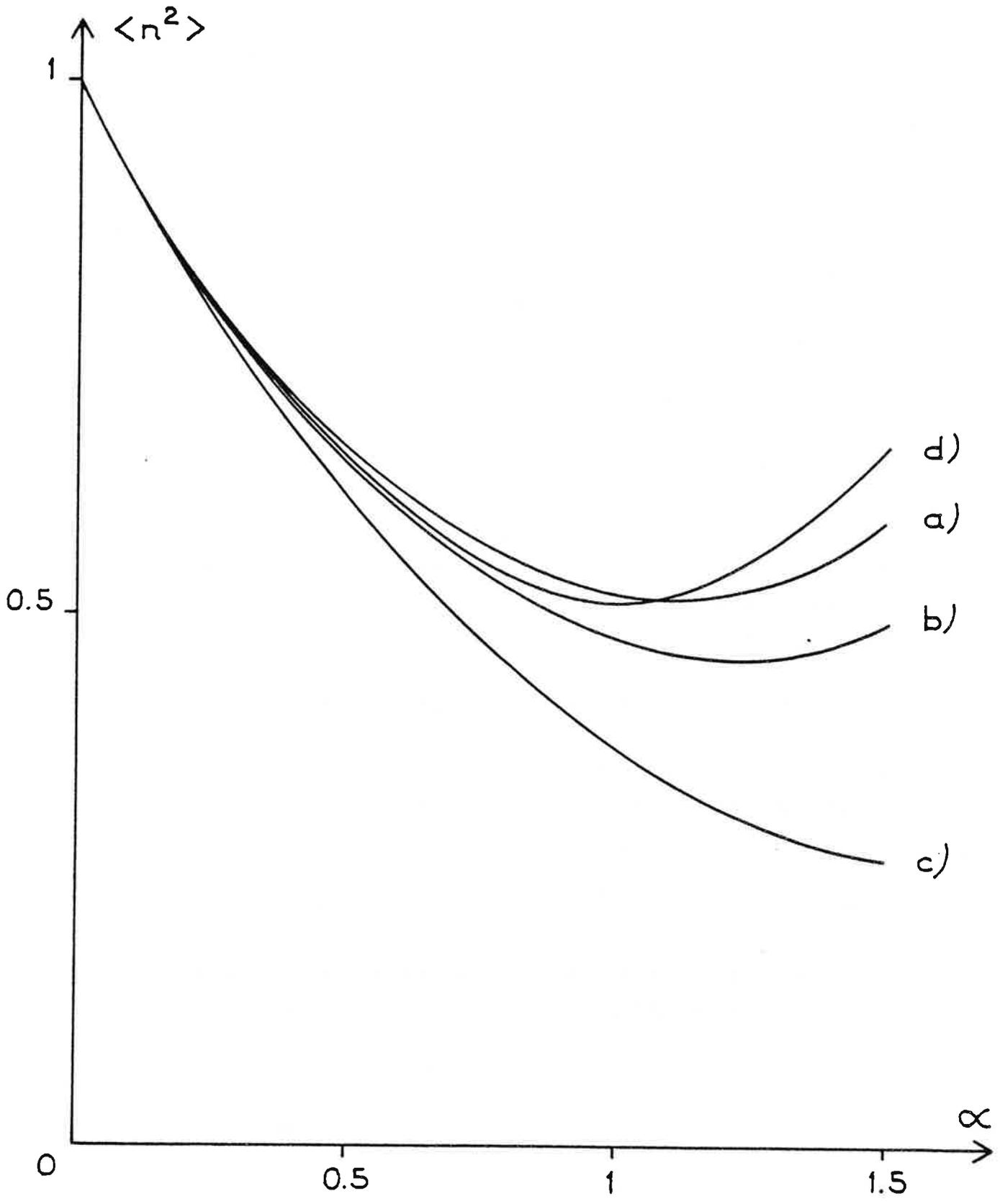


Figure IV.2

c) Carré de la solution de l'équation de Bourret

Identifiant $\langle n_{ab}^2 \rangle$ avec $\langle n_{ab} \rangle^2$, et utilisant la valeur de $\langle n_{ab} \rangle$ donnée par l'équation (IV.61) on obtient :

$$\begin{aligned} \langle n^2 \rangle &= \langle n \rangle^2 = \exp -\alpha \\ &= \left(1 - \alpha + \frac{\alpha^2}{2} - \frac{\alpha^3}{6} + \frac{\alpha^4}{24} + \dots \right) \end{aligned} \quad (\text{IV.72})$$

d) Solution approchée de l'équation de Bloch compatible avec l'équation de Bourret

Le moment d'ordre 2 de l'expression (IV.65) s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle n^2 \rangle &= \left\langle \left[J_0 \left(\sqrt{2} | I(t, \Delta) | \right) \right]^2 \right\rangle \\ &= e^{-\alpha} I_0(\alpha) \\ &= \left[1 - \alpha + \frac{3}{4}\alpha^2 - \frac{5}{12}\alpha^3 + \frac{35}{192}\alpha^4 + \dots \right] \end{aligned} \quad (\text{IV.73})$$

où $J_0(x)$ et $I_0(x)$ sont des fonctions de Bessel. Les courbes représentatives des différents développements à l'ordre 4 sont présentées sur la figure IV.2. L'approximation d) est celle qui, à l'ordre 4, se rapproche le plus de la solution exacte.

IV.6. CONCLUSION

Nous avons analysé l'excitation d'un système à deux niveaux par un champ fluctuant en phase et en amplitude dont la fonction d'autocorrélation possède trois pics de largeur τ_c situés en $\tau = 0$ et en $\tau = \pm t_{12}$. Nous obtenons deux solutions approchées qui conservent la norme du vecteur de Bloch. La première résulte de la troncature au premier ordre du développement de Magnus. Elle fournit une expression de n_{ab} valable pour toute valeur de t_{12} . Cependant, elle ignore des contributions du champ à tous les ordres du développement

perturbatif. La seconde solution est obtenue à l'aide de l'équation de Bourret. Elle produit une expression de $\langle n_{ab} \rangle$ dont le domaine de validité en fonction de la puissance est plus étendu. En revanche, cette solution exige que $|t_{12}| < (\chi^0)^{-2} \tau_c^{-1}$. Par ailleurs elle ne permet pas de déterminer les moments d'ordre 2 de n_{ab} . Toutes les solutions approchées que nous envisageons prévoient la relaxation de $\langle n_{ab} \rangle$ par le champ électromagnétique avec un taux instantané de l'ordre de $\gamma_s(t) = [\chi^0(t)]^2 \tau_c$.

V. EXPRESSION DU SIGNAL D'ECHO DE PHOTON

STIMULE EN CHAMP INTENSE

SECTION V

EXPRESSION DU SIGNAL D'ECHO DE PHOTON STIMULE EN CHAMP INTENSE

V.1. INTRODUCTION

Dans le paragraphe III.4.2 (a) l'énergie émise dans la direction \vec{k}_e sous forme d'écho de photon stimulé est exprimée par :

$$\langle W_{\vec{k}_e} \rangle \propto \int_0^{\infty} d\tau \int d\vec{v} \int d\vec{v}' \langle \hat{n}_{ab}(1; \vec{v}) \hat{n}_{ab}^*(1; \vec{v}') \rangle e^{i\vec{k}_3 \tau (\vec{v} - \vec{v}')} \quad (V.1)$$

Le signal d'écho de photon s'éteint lorsque l'intervalle t_{12} entre les deux premières impulsions change de signe, passant de $t_{12} > 0$ à $t_{12} < 0$. Dans le calcul perturbatif réalisé au paragraphe III.4.2 (b), l'expression de $\langle W_{\vec{k}_e} \rangle$ se décompose en deux termes. Le premier est lié à la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions. L'extinction de sa contribution au signal s'accomplit sur un intervalle de variation de t_{12} de l'ordre de $(k\bar{v})^{-1}$ centré en $t_{12} = 0$. Le second terme est indépendant de la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions. Sa contribution s'éteint sur un intervalle de variation de t_{12} de l'ordre de τ_L .

Dans ce chapitre nous proposons une extension de ce résultat dans le cas où la différence de population entre les niveaux s'exprime sous la forme :

$$n_{ab}(\vec{v}, t) = n_{ab}^0(\vec{v}) \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n |I(\Delta, t)|^{2n} \quad (V.2)$$

Cette forme est celle que revêtent les deux solutions approchées déterminées dans le chapitre précédent : approximation de Magnus au premier ordre de troncature et approximation

compatible avec l'équation de Bourret.

V.2. EXPRESSION DU SIGNAL LORSQUE $n_{ab} = n_{ab}^{(0)} \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n |I(\Delta, t)|^{2n}$

L'excitation d'un système à deux niveaux par deux impulsions de vecteurs d'onde \vec{k}_1 et \vec{k}_2 et de fréquences de Rabi $\chi_1(t)$ et $\chi_2(t)$ est décrite par l'équation (IV.1) dans laquelle on a :

$$\chi(t) = \chi_1(t) e^{i \frac{\vec{K} \vec{r}}{2}} + \chi_2(t) e^{-i \frac{\vec{K} \vec{r}}{2}} \quad (V.3)$$

où $K = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$. Cette description néglige la relaxation par diffusion du réseau spatial construit dans la population des niveaux atomiques. Compte tenu de la cohérence mutuelle entre les deux impulsions (équation III.8), la différence des populations s'écrit alors :

$$n_{ab} = n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \sum_n \alpha_n |I_1(\Delta)|^{2n} \times (2 \cos \varphi)^{2n} \quad (V.4)$$

où $\varphi = \frac{1}{2}(\vec{K} \vec{r} + \Delta t)_{12}$ et $I_1(\Delta) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \chi_1(t) e^{-i \Delta t}$

La composante de n_{ab} qui entre dans l'expression (V.1) du signal s'obtient à partir des équations (III.1) et (V.4) :

$$\hat{n}_{ab}(1, \vec{v}) = n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \sum_{n=1}^{\infty} \alpha_n |I_1(\Delta)|^{2n} C_{2n}^{n+1} e^{-i \Delta t}_{12} \quad (V.5)$$

On montre alors (appendice B) que, dans la région où $|t_{12}| \ll \tau_L$, l'expression du signal se met sous la forme :

$$\langle W_{\vec{k}_e} \rangle \propto \int_0^{\infty} d\tau \left| \int dv_z \langle \hat{n}_{ab}(1, v_z) \rangle e^{i k v_z \tau} \right|^2 + b \frac{2\pi}{k} \int dv_z \left[n_{ab}^{(0)}(v_z) \right]^2 \quad (V.6)$$

où $b^2 = \sum_{p=1}^{\infty} \sum_{n=1}^{\infty} \alpha_n \alpha_p C_{2n}^{n+1} C_{2p}^{p+1} \langle |I_1(0)|^2 \rangle^{n+p} (n+p)!$ (V.7)

On reconnaît dans le premier terme de l'équation (V.6) la contribution due à la cohérence mutuelle entre des deux premières impulsions excitatrices. Le second terme prend en compte toutes les contributions qui ne proviennent pas exclusivement de la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions. Ce second terme apparaît comme un fond indépendant de t_{12} dans la limite à $|t_{12}| \ll \tau_L$. On constate que la composante du signal qui résulte de la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions s'exprime en fonction du premier moment statistique de la différence des populations des niveaux. Les moments statistiques d'ordre supérieur n'interviennent que dans l'expression du fond indépendant de t_{12} .

On sait que $\langle |I_1(\Delta)|^{2n} \rangle = n! \langle |I_1(\Delta)|^2 \rangle^n$. On en déduit l'expression du premier terme de l'équation (V.6), en y remplaçant $\hat{n}_{ab}(1, v_z)$ par son expression donnée par l'équation (V.5) :

$$\int_0^\infty d\tau \left| \int dv_z \langle \hat{n}_{ab}(1, v_z) \rangle e^{ikv_z \tau} \right|^2 = 2\pi a^2 \int_{-t_{12}}^\infty d\tau \left| \hat{n}_{ab}^{(0)}(v_z) \right|^2 \quad (V.8)$$

$$\text{où } a = \sum_{n=1} \alpha_n C_{2n}^{n+1} n! \langle |I_1(0)|^2 \rangle^n \quad (V.9)$$

La forme de l'expression (V.8) en fonction de t_{12} est identique à celle obtenue par développement perturbatif (paragraphe III.4.2 (b)).

L'expression du signal se décompose en deux termes affectés de coefficients multiplicatifs a^2 et b^2 qui seuls dépendent de la puissance excitatrice. Dans le paragraphe suivant nous exprimons les quantités a^2 et b^2 dans les deux approximations envisagées au chapitre IV.

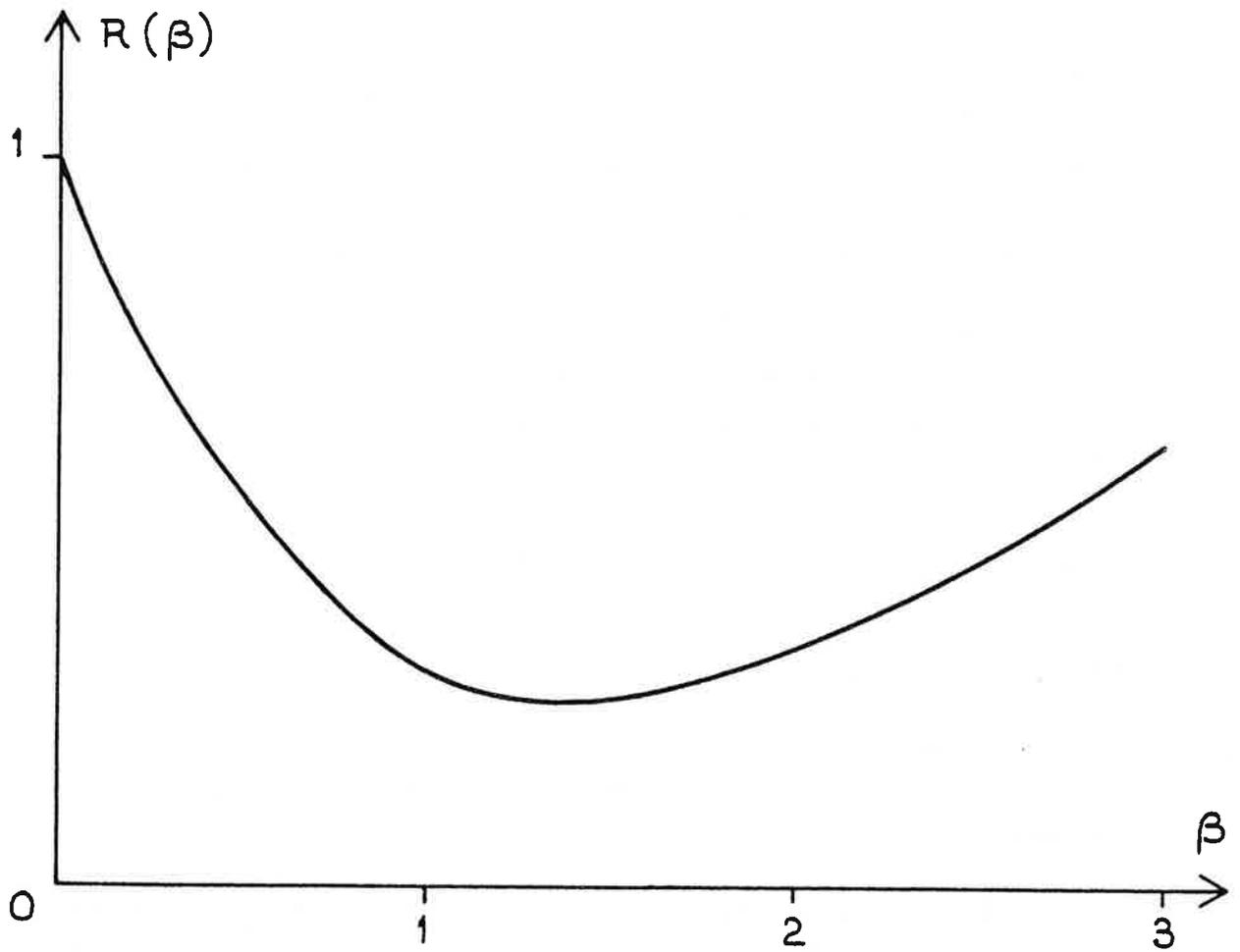


Figure V.1

V.3. APPROXIMATIONS PARTICULIERES

V.3.1. APPROXIMATION DE MAGNUS

Dans l'approximation de Magnus au premier ordre de troncature, la différence de populations entre les niveaux s'écrit (équation IV.19)

$$n_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) = n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) \cos[|I(\Delta, t)|] \quad (V.10)$$

Dans les équations précédentes on a donc :

$$\alpha_n = \frac{(-1)^n}{2n!} \quad (V.11)$$

On en déduit (appendice B) :

$$\begin{cases} a = \left(1 - e^{-\beta(\beta+1)}\right) / \beta \\ b^2 = e^{-2\beta} I_2(2\beta) \end{cases} \quad (V.12)$$

$$\text{où } \beta = \langle |I_1(0)|^2 \rangle$$

et où $I_2(x)$ est une fonction de Bessel. On a reporté sur la figure V.1, en fonction de β , la quantité $R = a^2/b^2$ qui exprime le rapport, en $t_{12} = 0$, entre la composante due à la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions, et le fond indépendant de t_{12} .

V.3.2. APPROXIMATION COMPATIBLE AVEC L'EQUATION DE BOURRET

Dans cette approximation, la différence de populations s'écrit :

$$n_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t) = n_{ab}^{(0)}(\vec{v}) J_0\left(\sqrt{2}|I(\Delta, t)|\right) \quad (V.13)$$

Dans les équations de a^2 et b^2 on a donc :

$$\alpha_n = \frac{(-1)^n}{2^n (n!)^2} \quad (V.14)$$

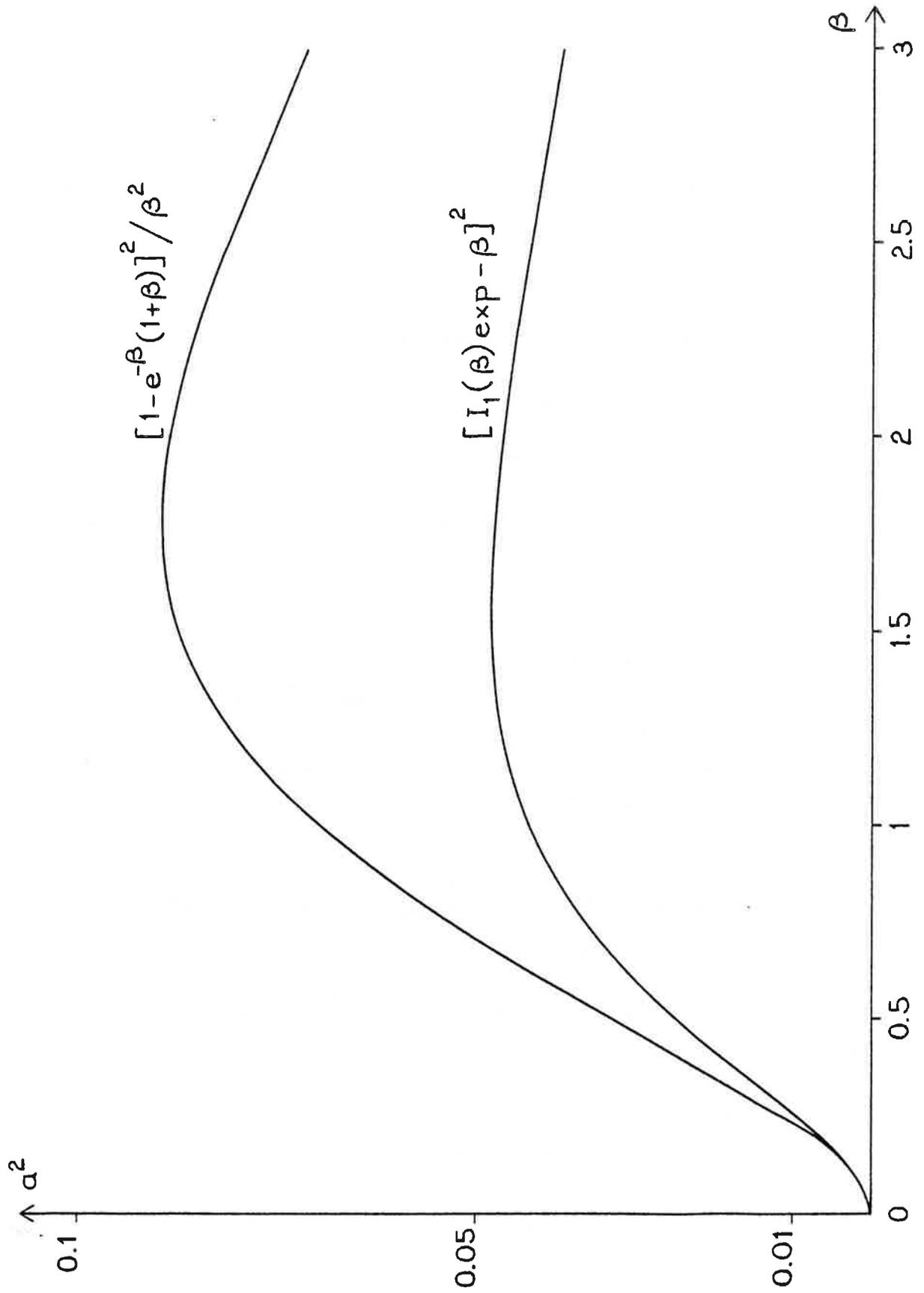


Figure V.2

On en déduit (appendice B)

$$a = e^{-\beta} I_1(\beta) \quad (V.15)$$

Comme nous l'avons vu plus haut, la composante du signal due à la cohérence mutuelle entre les deux impulsions s'exprime en fonction du seul premier moment statistique de n_{ab} . Aussi la validité de l'expression (V.15) est-elle seulement liée à celle de l'équation de Bourret et non à celle de l'approximation supplémentaire, développée au paragraphe IV.5.3, et qui aboutit à l'expression (V.13) de $n_{ab}(\vec{r}, \vec{v}, t)$. En revanche, l'expression de b^2 , obtenue à partir de (V.14) et (V.7), requiert la validité de l'expression (V.13).

Nous avons vu que le domaine de validité de l'équation de Bourret est délimité par la condition : $[\chi^0]^2 t_{12} \tau_c \ll 1$. La comparaison des expressions obtenues dans les deux approximations envisagées est donc pertinente en $t_{12} = 0$. La figure V.2 représente, en $t_{12} = 0$, la variation en fonction de β de la composante du signal liée à la cohérence mutuelle entre impulsions excitatrices. Les courbes correspondant aux deux approximations envisagées présentent des comportements analogues.

V.4. CONCLUSION

Nous obtenons dans ce chapitre l'expression de la variation du signal d'écho de photon stimulé en fonction de la puissance des impulsions laser. Cette expression se décompose en deux termes. L'un, lié à la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions excitatrices, s'exprime en fonction du seul premier moment statistique de n_{ab} . L'autre est un fond constant dans la limite en $t_{12} \ll \tau_L$. La courbe de variation du signal en fonction de $t_{12} \ll \tau_L$ ne subit aucune déformation sous l'effet de la puissance excitatrice. Il est difficile de préciser dans quelle me-

sure ces propriétés subsisteraient si une expression de n_{ab} plus proche de la solution exacte que l'équation (V.2) était adoptée.

VI. MONTAGE EXPERIMENTAL

SECTION VI

MONTAGE EXPERIMENTAL

VI.1. ECHO DE PHOTON STIMULE DANS LA VAPEUR DE CESIUM

VI.1.1. PRINCIPE DE L'EXPERIENCE

Nous réalisons sur la transition 6s-7p du Césium une expérience d'écho de photon stimulé dans la configuration décrite au chapitre III. Les vecteurs d'onde \vec{k}_1 , \vec{k}_2 , \vec{k}_3 des impulsions excitatrices sont tels que $\vec{k}_1 = \vec{k}_3$ et $(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \approx \text{mrad}$. L'échantillon est une vapeur à l'équilibre thermodynamique. La largeur Doppler ω_D de la transition, la durée τ_L des impulsions et leur temps d'autocorrélation τ_c satisfont la condition :

$$\tau_c \ll \omega_D^{-1} \ll \tau_L.$$

Les deux premières impulsions, issues de la même source, sont cohérentes entre elles. L'aire θ_3 de la troisième impulsion est telle que $\theta_3 \ll 1$. La troisième impulsion traverse l'échantillon après extinction des deux premières. Nous mesurons la variation de l'intensité du signal d'écho émis dans la direction $\vec{k}_e = \vec{k}_2$ en fonction de l'intervalle t_{12} entre les deux premières impulsions. Selon les expressions obtenues aux chapitres III et V, la courbe ainsi déterminée est étroitement liée à la fonction de distribution de vitesse atomique. Nous désirons vérifier cette propriété et explorer les phénomènes parasites qui affectent la forme de la courbe.

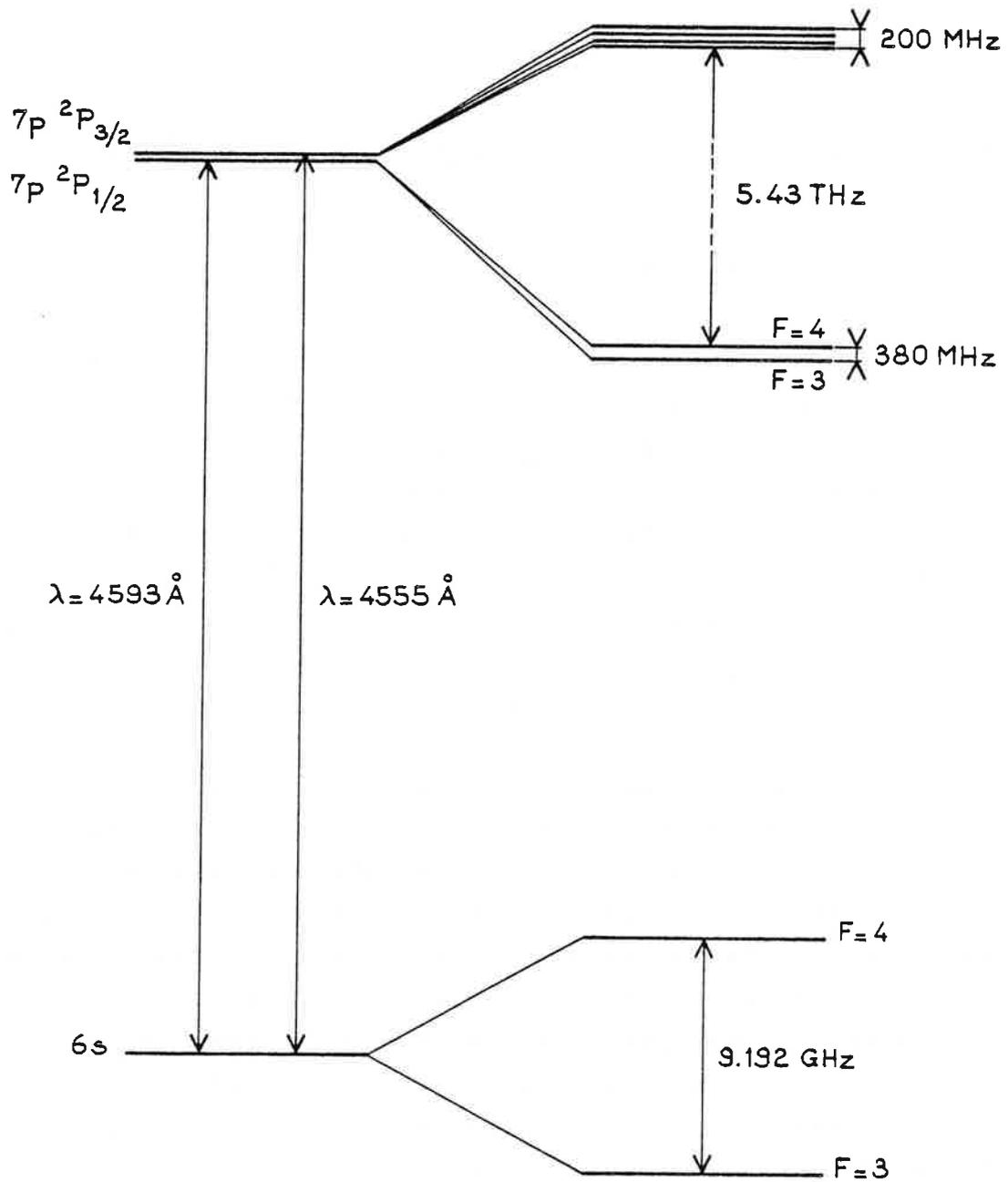


Figure VI.1

VI.1.2. QUELQUES PROPRIETES DU CESIUM

Le Césium est un élément alcalin lourd dont un seul isotope est stable. Sa masse est $m = 133$ u.a. Les mesures de la tension de vapeur [45] sont reportées dans le tableau suivant :

Température (°C)	25.4	30.2	38.2	39.9	46.2	67.8	72.7
Tension de vapeur (10^{-6} torr)	1.53	2.43	5.12	6.03	10.72	63.42	87.66

L'expérience est réalisée sur la transition $6s-7p$ du Césium. Les structures fine et hyperfine de cette transition sont représentées sur la figure VI.1 [43,44]. Les durées de vie des niveaux $7p^2P_{3/2}$ et $7p^2P_{1/2}$ sont respectivement 134(3) ns et 158(5) ns [46]. Les forces d'oscillateur des transitions $6s-7p^2P_{3/2}$ et $6s-7p^2P_{1/2}$ sont respectivement 1.33×10^{-2} et 3.20×10^{-3} [47].

VI.2. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le schéma du dispositif expérimental est représenté sur la figure VI.2. Nous décrivons ci-dessous les principaux éléments qui le composent.

VI.2.1. SOURCE LUMINEUSE

Les trois impulsions excitatrices sont issues d'une même source. Il s'agit d'une source superradiante constituée par un laser à colorant privé de son miroir de sortie. On dispose ainsi d'une source dont le spectre d'émission est dépourvu de structure de mode. Le milieu actif (éthanol + coumarine 460) est contenu dans une cellule à circulation en silice fondue de forme parallélépipédique (Hellma) : le

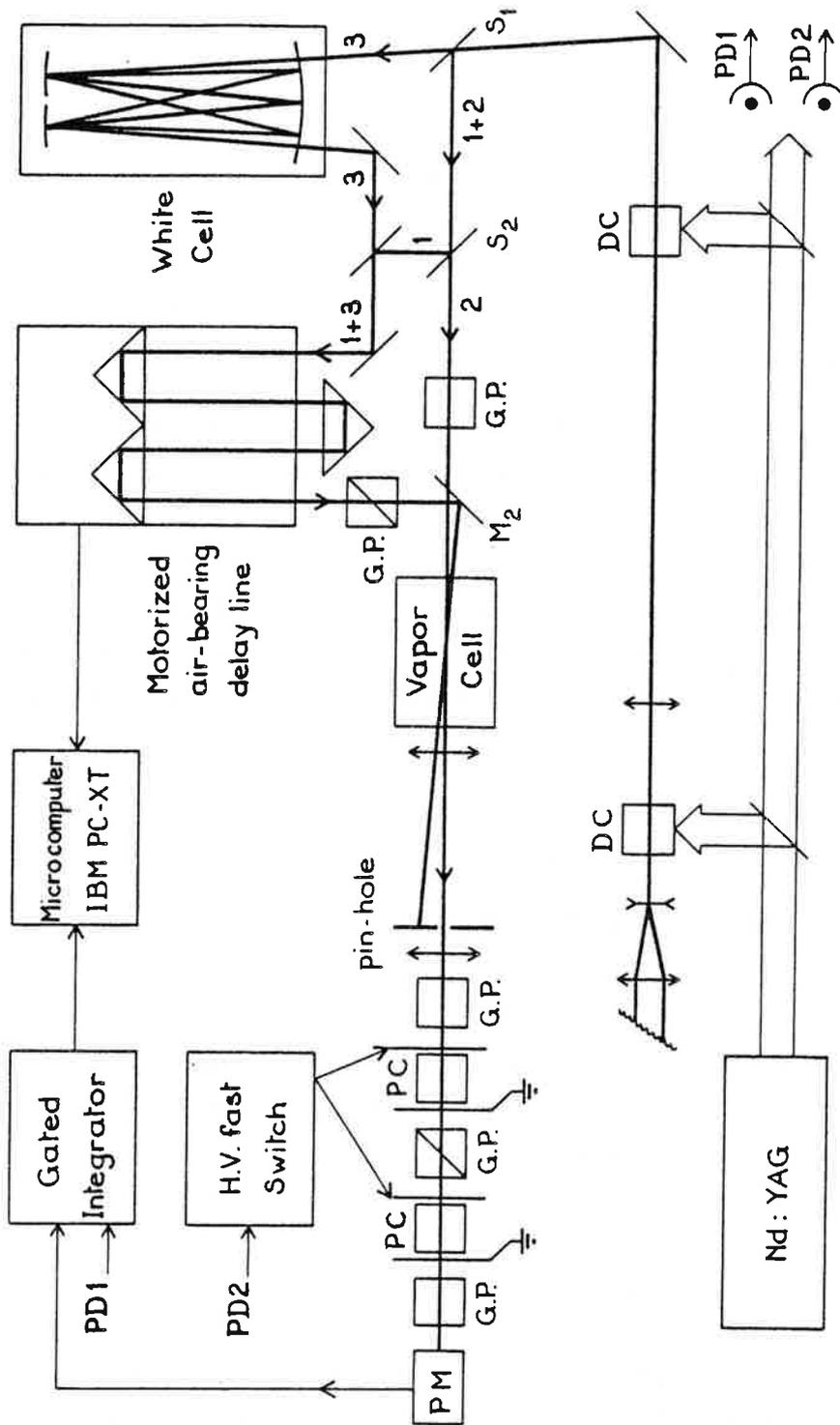


Figure VI.2

colorant est excité transversalement par un faisceau à $\lambda = 355$ nm obtenu par triplement de fréquence du faisceau I.R. émis par un laser Nd-YAG. Un réseau à échelle utilisée en montage Littrow permet d'obtenir l'émission superradiante à la longueur d'onde choisie. L'adaptation optique est assurée par un télescope placé entre la cellule et le réseau. Un amplificateur porte l'énergie par impulsion à 1 mJ. La distance de 4 m ménagée entre la source superradiante et l'amplificateur permet d'éviter tout couplage entre eux pendant la durée du pompage (12 ns). La durée des impulsions superradiantes est comprise entre 5 et 7 ns. Leur largeur spectrale se situe entre 5 et 10 GHz. Le taux de répétition est de 15 s^{-1} .

VI.2.2. DECOMPOSITION EN TROIS IMPULSIONS DECALEES DANS LE TEMPS

La séparatrice S_1 prélève le faisceau 3 et le dirige vers une ligne à retard optique (cellule de White [48]). La séparatrice S_2 prélève le faisceau 1 qui après recombinaison avec le faisceau 3 subit un retard variable avant d'être recombinaison avec le faisceau 2 sur la mélangeuse M_2 .

La cellule de White que traverse le faisceau 3 est constituée de trois miroirs M_1 , M_2 , M_3 de même rayon de courbure $R = 40$ cm disposés de telle sorte que M_1 et M_2 sont image l'un de l'autre dans le grand miroir M_3 et que le centre C_1 (resp. C_2) du petit miroir M_1 (resp. M_2) est sur le miroir M_3 (figure VI.3). Le faisceau sort de la ligne à retard après un nombre d'aller-retour déterminé par la position et la distance des centres C_1 et C_2 des petits miroirs. On peut faire varier le retard $t_{13} = t_3 - t_1$ par pas de $4R/c = 5.33$ ns en jouant sur l'inclinaison de M_2 et donc sur la position de C_2 . A l'aide de ce montage, de grands retards sont réalisés sous un faible encombrement. De plus, les caractéristiques géométriques du faisceau de sortie ne dépendent pas du nombre d'aller-retour. Dans notre expérience les mesures sont réalisées avec $t_{13} = 18$ ns.

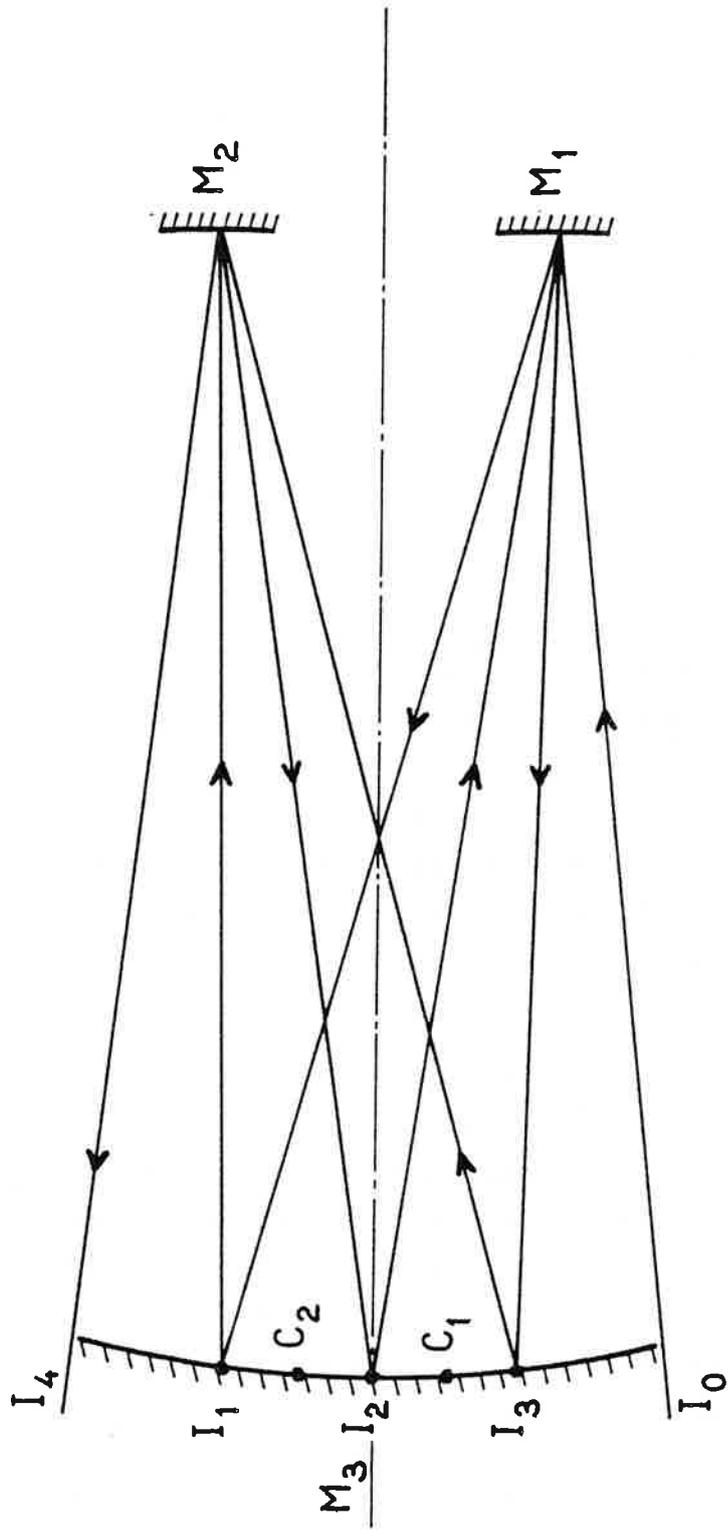


Figure VI.3

La ligne à retard variable placée sur le trajet des faisceaux 1 et 3 est constituée de trois prismes à réflexion totale (figure VI.4). Deux d'entre eux sont solidaires d'un plateau de translation motorisé sur coussin d'air (Microcontrôle TCA 250). Le troisième est fixe. Lorsque le plateau parcourt la distance ℓ , le chemin optique des faisceaux varie de 4ℓ . La course du plateau étant de 19 cm, le domaine de variation de t_{12} s'étend sur 2.53 ns.

VI.2.3. FOUR

La vapeur de Césium est contenue dans une cellule cylindrique en verre spécial (Corning Glass 1720) longue de 22 cm, munie d'un queusot et reliée à un banc de pompage à travers un robinet en pyrex. (Figure VI.5). Ce dernier est constitué de deux rodages dont on contrôle l'emboîtement par déplacement d'une masselotte magnétique. La cellule et le robinet sont enfermés dans une enceinte thermostatée. On évite ainsi la formation de points froids et la condensation du Césium sur les fenêtres de la cellule ou sur la paroi du tube de liaison au banc de pompage. Le Césium est contenu dans le queusot. Ce dernier est isolé de l'enceinte et sa température est fixée par une circulation d'huile thermostatée. Ce montage permet de contrôler séparément la température de la vapeur et sa densité. La température de l'enceinte peut atteindre 350°C et celle de l'huile 200°C.

VI.2.4. SELECTION ANGULAIRE ET TEMPORELLE DU SIGNAL

Le signal et les impulsions excitatrices se propagent dans des directions voisines. Or seul le signal doit atteindre le détecteur qui serait aveuglé par les impulsions excitatrices. Les impulsions 1 et 3 émises dans la direction $\vec{k}_1 = \vec{k}_3$ distinctes de $\vec{k}_e = \vec{k}_2$ sont éliminées par sélection angulaire. L'impulsion 2 qui se propage dans la même direction que l'écho est éliminée à l'aide d'un obturateur électro-optique qui s'ouvre seulement après son passage.

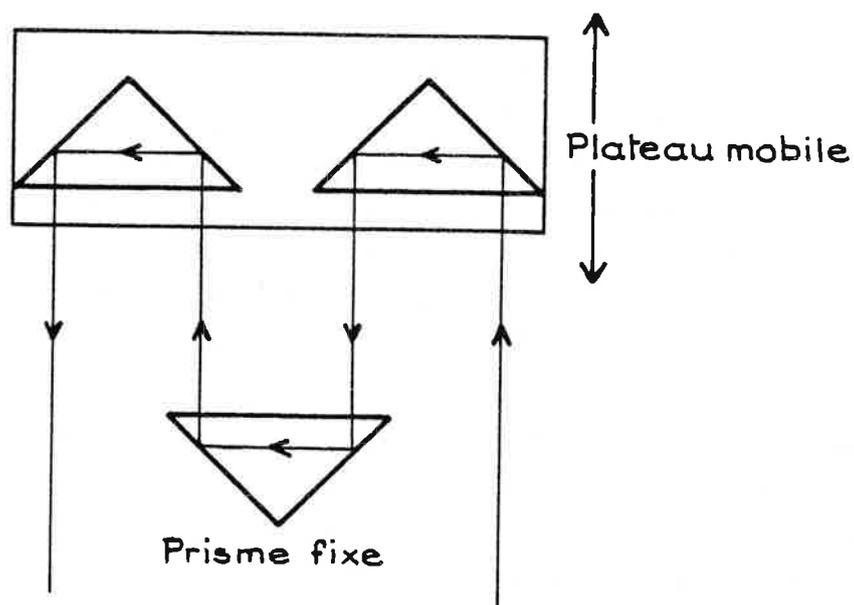


Figure IV.4

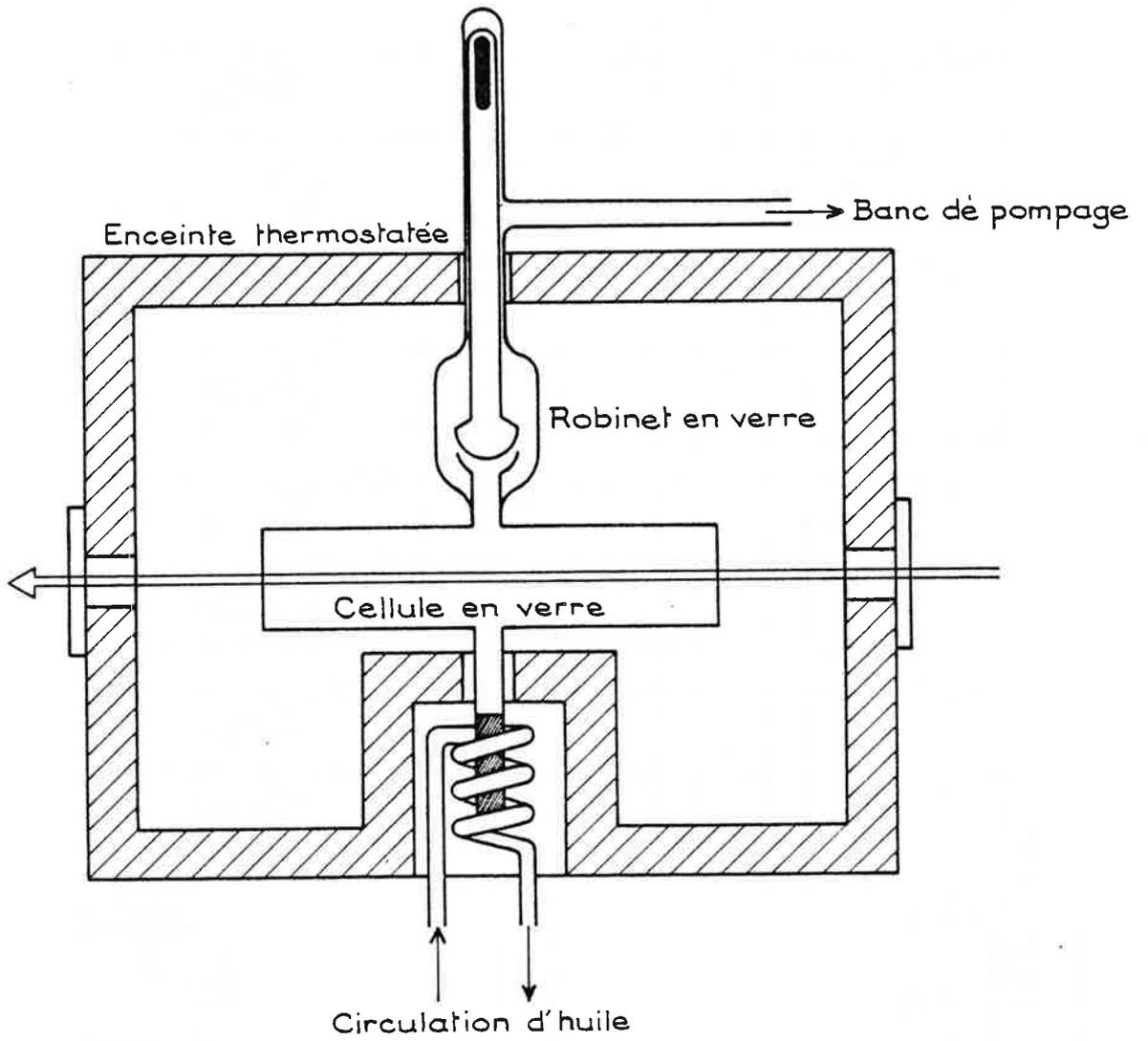


Figure VI.5

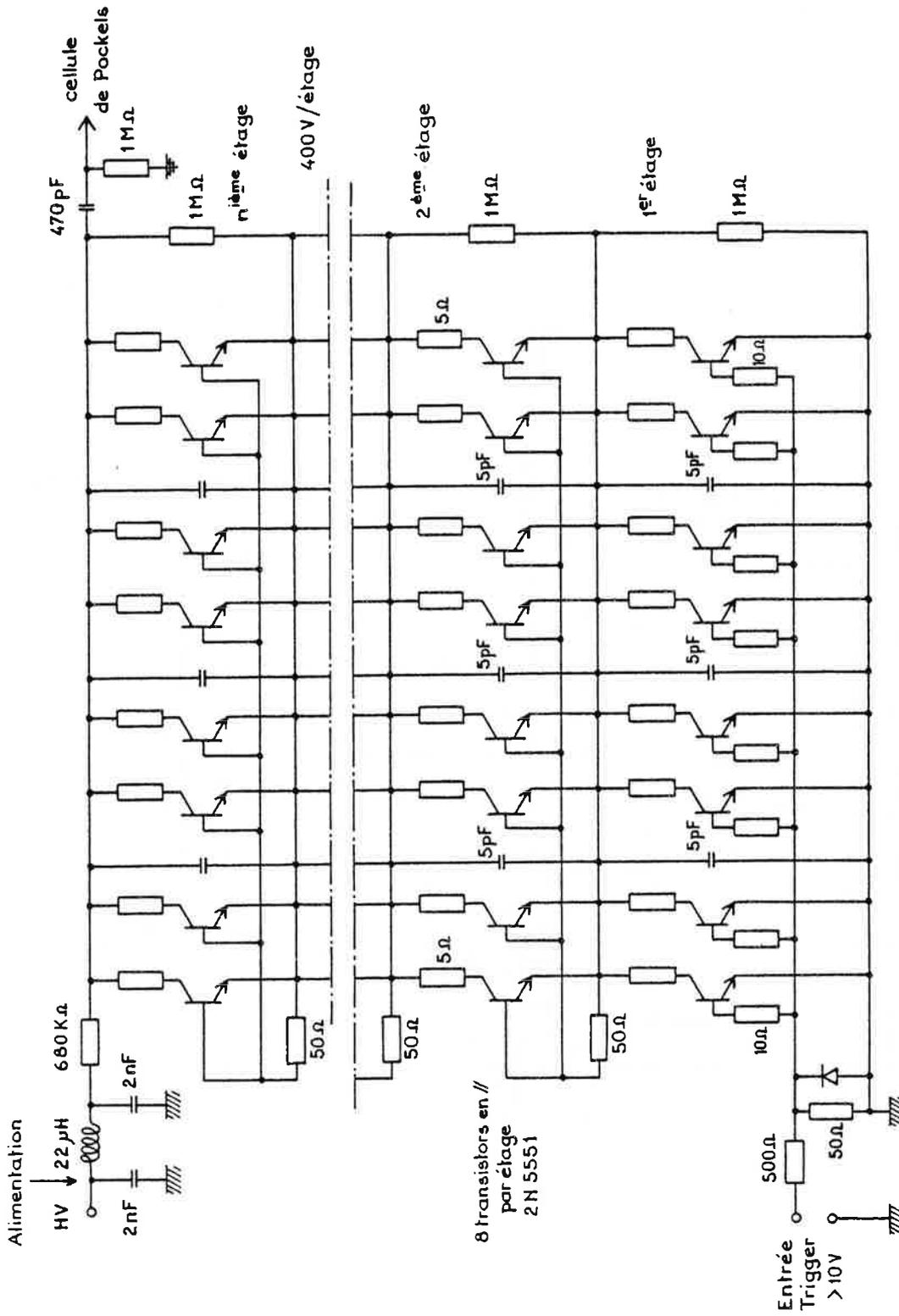


Figure VI.6

A la sortie du four les faisceaux traversent une lentille convergente de distance focale $f \approx 30$ à 40 cm. Un trou d'épingle est alors placé sur le trajet du faisceau 2 au point de diamètre minimum. Pourvu que la divergence des faisceaux soit inférieure à l'angle (\vec{k}_1, \vec{k}_2) , un trou d'épingle ajusté à la dimension du faisceau 2 laisse passer ce faisceau ainsi que le signal d'écho stimulé tandis qu'il arrête les faisceaux 1 et 3.

Le faisceau 2 et le signal rencontrent alors un obturateur électro-optique constitué de cellules de Pockels placées entre des prismes polariseurs croisés (prismes de Glan) (figure VI.2). L'ouverture de l'obturateur est commandée dans l'intervalle de temps qui s'écoule entre l'arrivée des deux premières impulsions et celle du signal d'écho. Le principe de fonctionnement de ce dispositif repose sur l'apparition de biréfringence dans un cristal soumis à un champ électrique. La cellule de Pockels est, en l'absence de champ électrique, un cristal uniaxe (KDP) dont on oriente l'axe optique suivant la direction de propagation des faisceaux lumineux. La vibration lumineuse, conserve alors en traversant le cristal la polarisation fixée par le premier prisme et elle est arrêtée par le deuxième polariseur. Le taux d'extinction dépend de la qualité spatiale des faisceaux laser. Il atteint 10^6 dans notre expérience pour un obturateur composé de deux étages en série. Sous l'effet d'un champ électrique appliqué suivant l'axe optique initial le milieu devient biaxe. Le cristal modifie la polarisation de la vibration lumineuse dont la composante parallèle au deuxième polariseur est alors transmise. L'ouverture des cellules de Pockels est commandée par les impulsions haute tension (3 kV) que fournit un commutateur HT (figure VI.6) déclenché par la photodiode PD_2 . Cette valeur de la haute tension correspond à la transmission maximum du dispositif à 459 nm. Le cristal polarisé se comporte alors comme une lame $\lambda/2$. Le commutateur HT est constitué par une chaîne de transistors qui fonctionnent en régime d'avalanche. Chaque étage de la chaîne comprend huit transistors

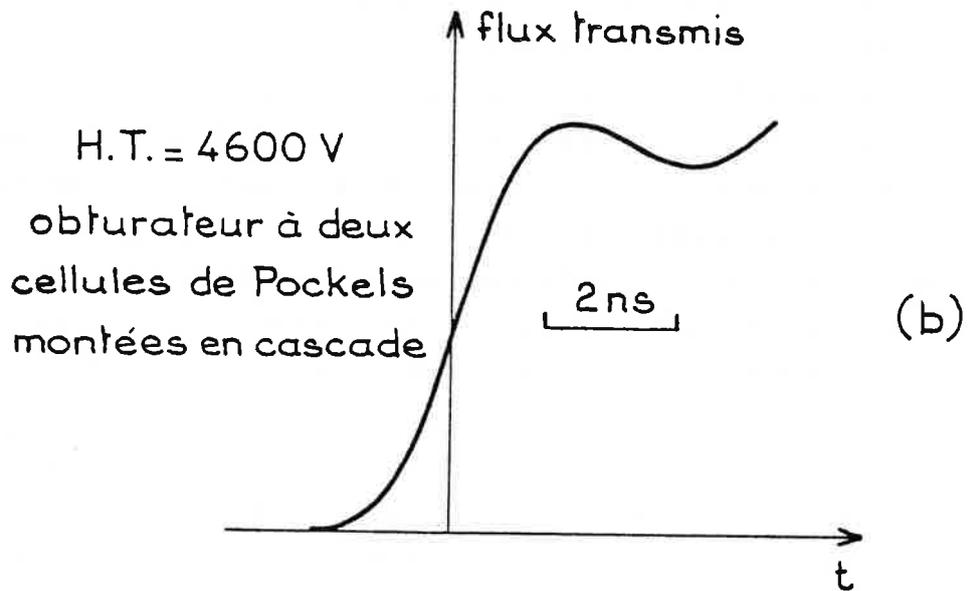
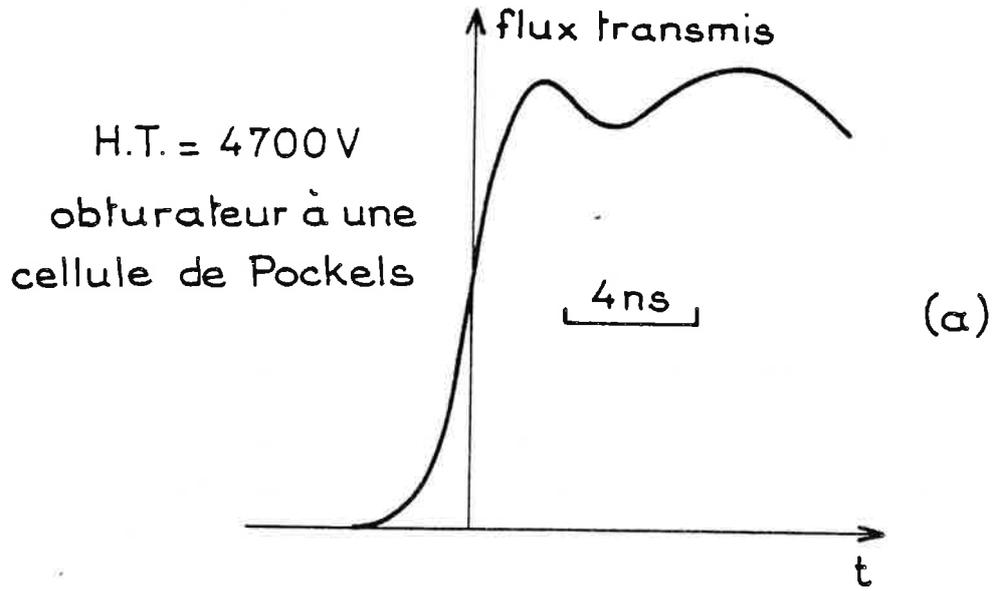


Figure VI.7

montés en parallèle. La tension de commutation est fixée par le nombre d'étages mis en série. Elle est de 400 V par étage. La mise en série de 13 étages (soit 108 transistors) permet d'atteindre une tension de commutation maximale de 5000 V. La transmission d'un faisceau laser continu monomode à travers les cellules de Pockels permet d'optimiser leur rapidité. Les traces obtenues sur un écran d'oscilloscope Tecktronix 485 (figure VII.7) représentent le flux transmis en fonction du temps. La valeur de la tension de polarisation ($HT \approx 4600$ V) utilisée dans cette opération, est adaptée à la longueur d'onde de la lumière transmise (600 nm). Le temps de montée de l'obturateur est inférieur à 2 ns. Une ligne à retard électrique permet de retarder le déclenchement du commutateur HT par pas de 1 ns et de provoquer ainsi l'ouverture des cellules de Pockels au moment désiré.

VI.2.5. POLARISATION DES FAISCEAUX

L'expérience est réalisée dans deux configurations de polarisations différentes :

- Polarisation croisées : les polarisations des deux premières impulsions sont rectilignes et croisées. Les polarisations des faisceaux 1 et 3 sont identiques. L'écho est détecté suivant la polarisation du faisceau 2. Cette configuration améliore l'élimination du faisceau 3 qui est arrêté par le premier prisme de l'obturateur électro-optique. L'angle (\vec{k}_1, \vec{k}_2) peut alors être réduit jusqu'à 1 mrad.

- Polarisation parallèles : toutes les impulsions excitatrices ainsi que l'écho ont même polarisation rectiligne. L'élimination du faisceau 3 est obtenue par la seule sélection angulaire. L'angle (\vec{k}_1, \vec{k}_2) atteint alors typiquement 20 mrad. Un angle aussi important ne contrevient pas à la condition d'accord de phase qui est ici indépendante de la valeur de (\vec{k}_1, \vec{k}_2) . La condition d'élimination de l'ef-

fet Doppler transverse et de la relaxation par diffusion (chapitre II.3.3) est elle aussi satisfaite.

VI.2.6. DETECTION ET ACQUISITION

Après sélection angulaire et temporelle, le signal atteint un photomultiplicateur rapide à 14 étages (la Radio Technique RTC 2254B) relié à un intégrateur à porte variable (EGG/PAR 162+165). L'ouverture de la porte est déclenchée par la photodiode PD₁. A l'instant t de fermeture de la porte, le signal issu de l'intégrateur peut être décrit par :

$$\bar{I}(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \int_0^{\tau_p} \frac{dt'}{\tau_p} I(t-nT+t'-\tau_p) \exp\left(-\frac{t-t'-n\tau_p}{\tau_i}\right)$$

où I(t) représente le signal à l'entrée de l'intégrateur, τ_i , τ_p , T désignent respectivement la constante d'intégration, la durée d'ouverture de la porte, et l'intervalle entre deux impulsions successives du laser pompe. Dans notre expérience le taux de répétition du laser pompe vaut $T^{-1} = 15 \text{ s}^{-1}$ et nous ajustons les paramètres τ_i et τ_p à $\tau_i = .5 \text{ } \mu\text{s}$ et $\tau_p \approx 100 \text{ ns}$. La constante de temps de l'intégrateur à porte est de l'ordre de $\frac{\tau_i}{\tau_p} \times T = .4 \text{ s}$. La constante de temps finale de l'appareil est en fait portée à .5 s par un intégrateur supplémentaire placé en sortie.

Pour obtenir la courbe représentative de la variation d'intensité du signal en fonction de t_{12} , on enregistre le signal issu de l'intégrateur tandis que la ligne à retard variable, animée d'un mouvement de va-et-vient asynchrone, explore un domaine de 2.53 ns autour de la position $t_{12} = 0$. L'intervalle de variation de t_{12} est parcouru en 12 s, ce qui représente 180 tirs du laser pompe. La position de la ligne à retard est indiquée par un signal digital compris entre 0 et 152. La course de la ligne à retard est donc divisée en 152 pas ou canaux. Une séquence d'impulsions excitatrices au moins est émise à chaque pas.

Un microordinateur met en mémoire, à chaque tir du laser pompe, la position de la ligne à retard et l'intensité du signal issu de l'intégrateur. Les enregistrements que nous avons effectués comprennent en général 9000 mesures accumulées en 10 mn. Ceci correspond à 60 mesures environ par canal de la ligne à retard. La mémoire du microordinateur utilisé (IBM PC-XT) est divisée en segments de 64 Koctets. Chacune des deux voies de mesure (position de la ligne à retard, signal d'écho) est adressée à un segment déterminé. A raison de 2 octets par mesure, la limite de capacité pour un enregistrement se situe à 32000 mesures accumulées en 35 mn. Les mesures sont toutes stockées en mémoire pour un traitement ultérieur mais le temps mort de 60 ms entre deux tirs successifs est mis à profit pour effectuer en cours d'acquisition la moyenne des signaux enregistrés dans chacun des 152 canaux. La moyenne statistique du signal est ainsi visualisée en temps réel, pendant l'enregistrement.

Dans le chapitre suivant nous examinons les profils obtenus à la lumière de la discussion théorique des chapitres III, IV, V.

VII. RESULTATS EXPERIMENTAUX. DISCUSSION

SECTION VII

RESULTATS EXPERIMENTAUX. DISCUSSION

VII.1. CONDITIONS EXPERIMENTALES

VII.1.1. EPAISSEUR OPTIQUE DE L'ECHANTILLON

Considérons un gaz composé de systèmes à deux niveaux reliés par une transition de fréquence ν_0 . Dans la limite où la largeur Doppler est très supérieure à la largeur homogène de la transition, le coefficient d'absorption par unité de longueur à la fréquence ν s'écrit [49] :

$$k_\nu = k_0 \exp - [2(\nu - \nu_0) \sqrt{\ln 2} / \nu_D]^2$$

où $k_0 \approx 3r_e c f_{ik} N / \nu_D$

où r_e désigne le rayon classique de l'électron ($r_e = e^2 / mc^2$), f_{ik} est la force d'oscillateur, N est la densité atomique et $\nu_D = \frac{2\sqrt{2\ln 2}}{\lambda} \sqrt{\frac{RT}{m}}$ est la largeur Doppler. Dans notre expérience la température de la cellule est $T = 420$ K, la température du queusot fixe la tension de vapeur à 12×10^{-6} Torr. On obtient alors :

$$\nu_D = 831 \text{ MHz} \quad k_0 = 2.7 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

L'épaisseur optique de la colonne de vapeur de longueur $L = 22$ cm est : $k_0 L \approx .6$. On peut alors montrer que 20 % de l'énergie émise sous forme d'écho de photon est absorbée par l'échantillon.

VII.1.2. FREQUENCE DE RABI

Dans les calculs développés dans les chapitres précédents les transitions optiques couplent toujours des niveaux non dégénérés. Or les niveaux couplés par la transition 6s-7p du Césium sont dégénérés. Dès lors le terme d'interaction avec le champ électromagnétique est fonction des sous-niveaux mis en jeu et il est impossible de caractériser l'interaction à l'aide d'une seule fréquence de Rabi. Renonçant à un examen détaillé nous négligeons la structure hyperfine et nous écrivons le terme d'interaction entre un champ polarisé suivant Ox et un système à deux niveaux $^2S_{1/2}$ - $^2P_{1/2}$ sous la forme :

$$-\langle \frac{1}{2}m | E_x D_x | \frac{1}{2}m \rangle = -E_x \cos(\omega t + \varphi) \langle \frac{1}{2} || D || \frac{1}{2} \rangle \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ m & 0 & -m \end{pmatrix}$$

La fréquence de Rabi correspondante s'écrit :

$$\chi = \langle \frac{1}{2} || D || \frac{1}{2} \rangle E_x / \hbar \sqrt{6}$$

Par ailleurs on a [50]

$$f_{ik} = \frac{4\pi}{3g_i} (\hbar \lambda r_e c)^{-1} |\langle k || D || i \rangle|^2$$

et l'expression du flux lumineux en fonction de l'amplitude du champ s'écrit :

$$\phi = c E_x^2 / 4\pi$$

On obtient donc finalement

$$\chi^2 = f_{ik} \lambda r_e \phi / \hbar$$

En l'absence d'atténuation, le flux lumineux de chacun des faisceaux 1 et 2 à l'entrée du four s'élève à 10^5 Watt/cm². La fréquence de Rabi correspondante est $\chi \approx 6 \times 10^9$ s⁻¹. Le flux lumineux du faisceau 3 est fortement atténué. Il atteint 10^3 Watt/cm² ce qui correspond à $\chi \approx 6 \times 10^8$ s⁻¹.

VII.2. ETUDE EN POLARISATIONS PARALLELES

Sur la figure VII.1 sont tracées les courbes représentatives de la variation de l'intensité moyenne du signal d'écho en fonction de l'intervalle t_{12} entre les deux premières impulsions. Les courbes en trait plein sont obtenues expérimentalement pour trois intensités différentes des impulsions excitatrices.

Ces courbes sont obtenues par traitement des enregistrements dont un exemple est présenté sur la figure VII.2 (a). Un enregistrement est composé de deux traces qui correspondent aux deux sens de déplacement de la ligne à retard variable. La constante de temps de l'intégrateur à porte variable produit un écart entre les deux traces. Sachant qu'une trace est parcourue en 12 s, on vérifie, par la mesure de l'écart entre les traces, la valeur de la constante de temps de l'intégrateur (.5 s). Le minimum des courbes est alors pris pour niveau zéro du signal. On élimine ainsi le fond lentement variable en fonction de t_{12} . Puis, par filtrage numérique, on ne conserve des enregistrements que leurs composantes spectrales de fréquence inférieure à 2 GHz. On obtient ainsi les courbes de la figure VII.2 (b). Enfin on réunit les deux traces par déconvolution, en attribuant à l'intégrateur une fonction d'appareil exponentielle de constante de temps .5 s. Le profil n°3 de la figure VII.1. est ainsi obtenu à partir des deux traces de la figure VII.2.

Les deux premières impulsions excitatrices sont atténuées d'un facteur 1, 3 et 10 pour produire les profils numérotés respectivement 1, 2, 3 de la figure VII.1. La courbe en pointillé représente le profil théorique de la composante du signal due à la cohérence mutuelle entre les deux premières impulsions. La forme de cette courbe est insensible à l'intensité des deux premières impulsions d'après la discussion du chapitre V. Dans une vapeur à l'équilibre thermodynamique cette forme est décrite par l'expression

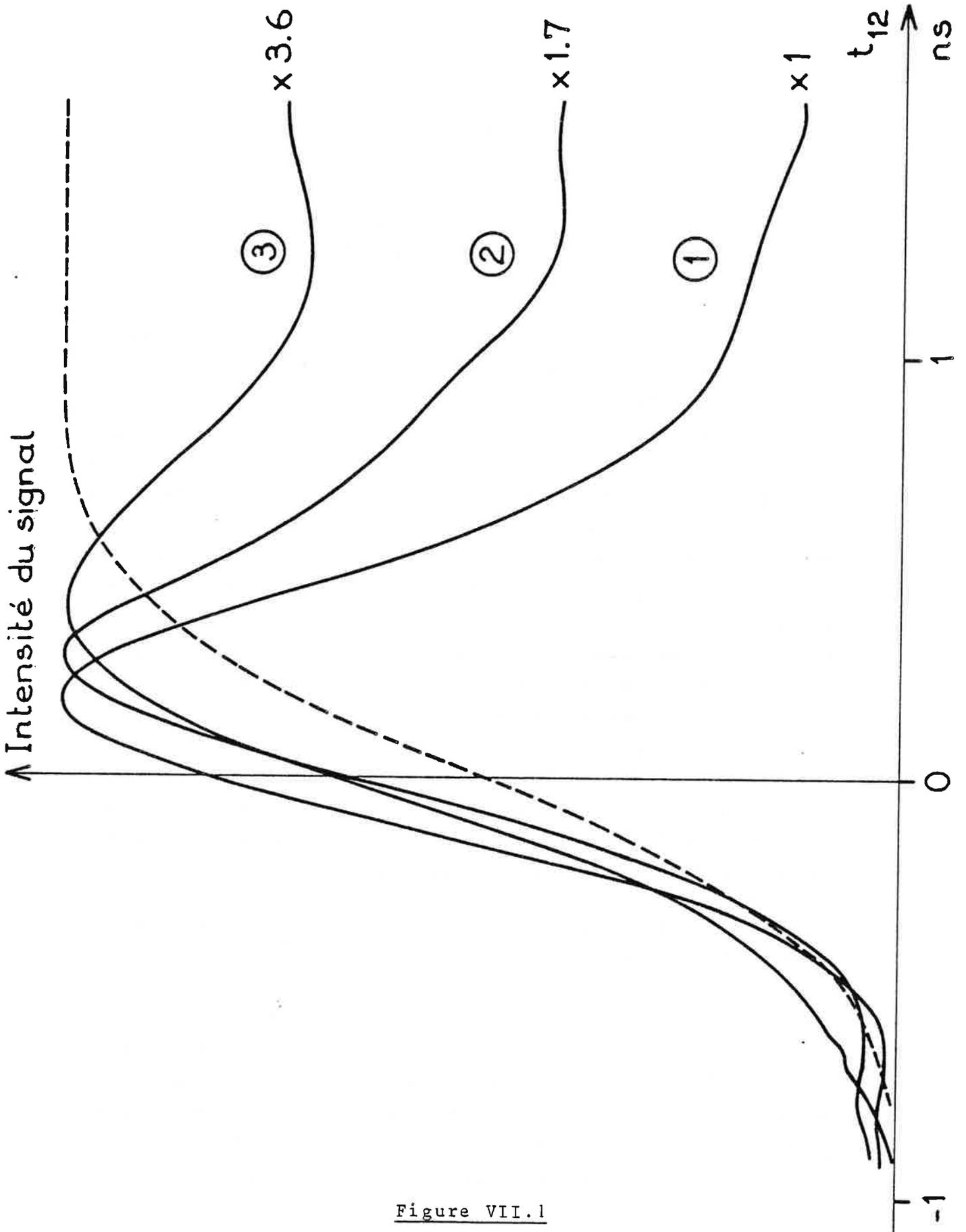


Figure VII.1

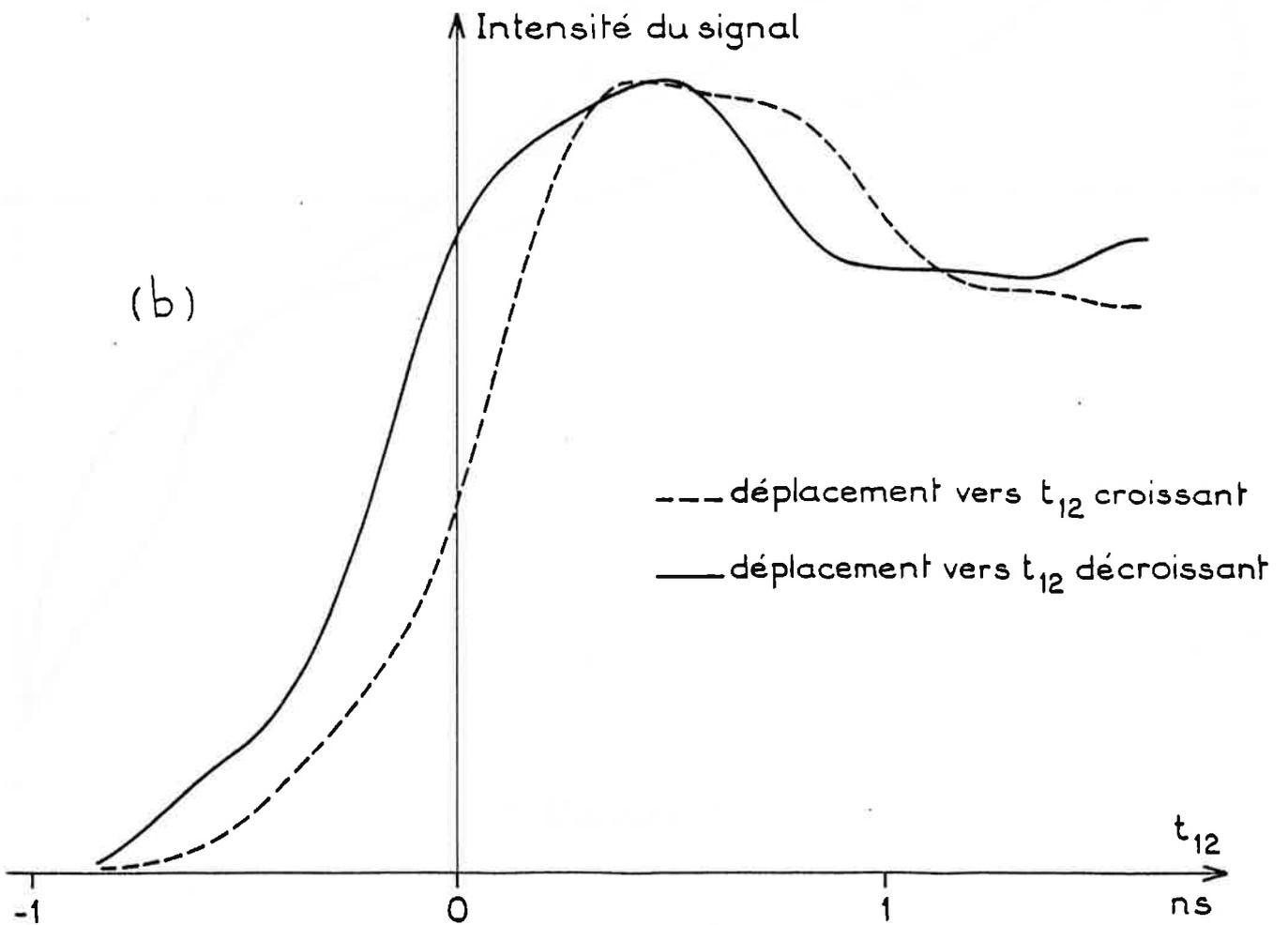
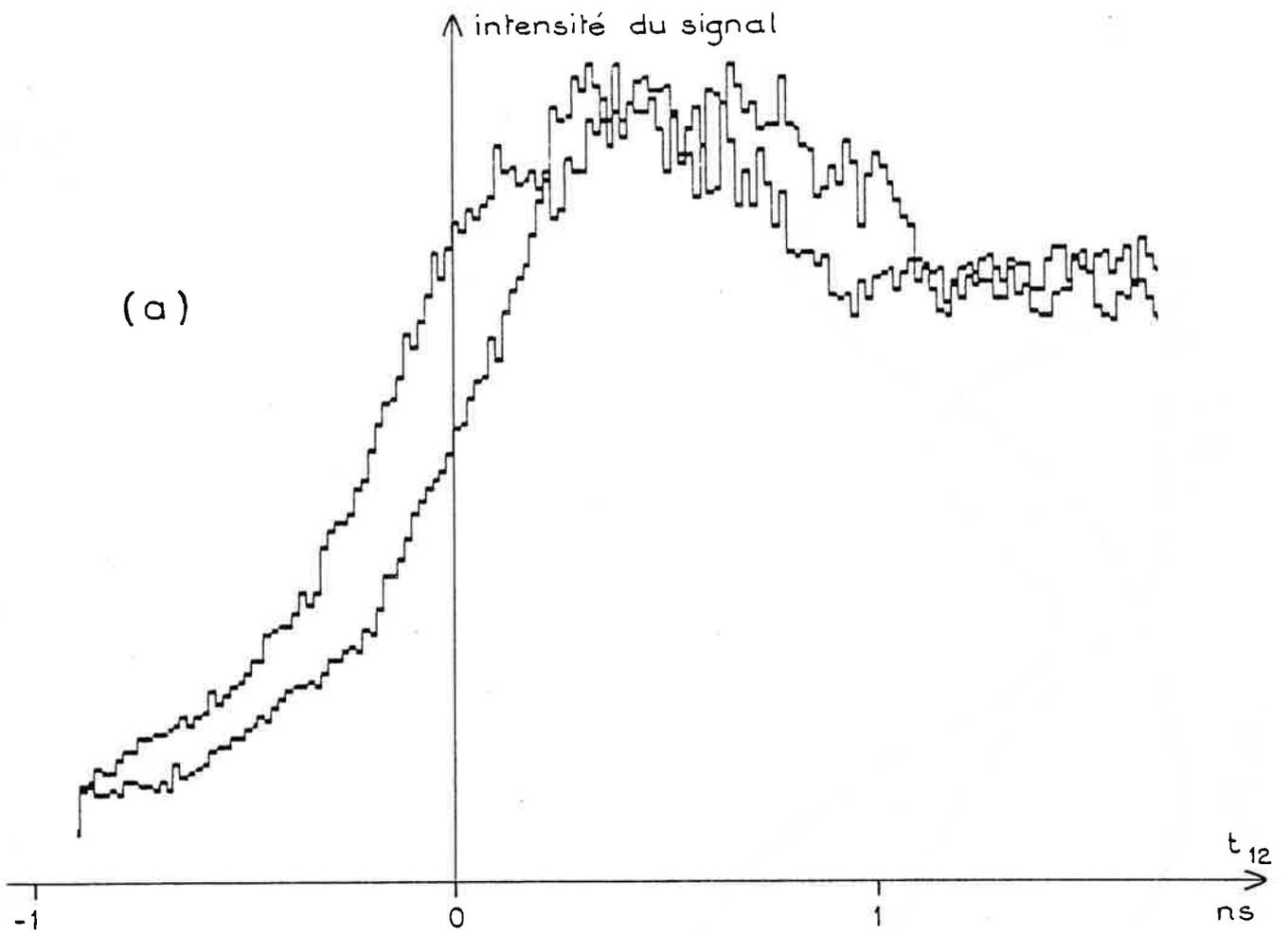


Figure VII.2

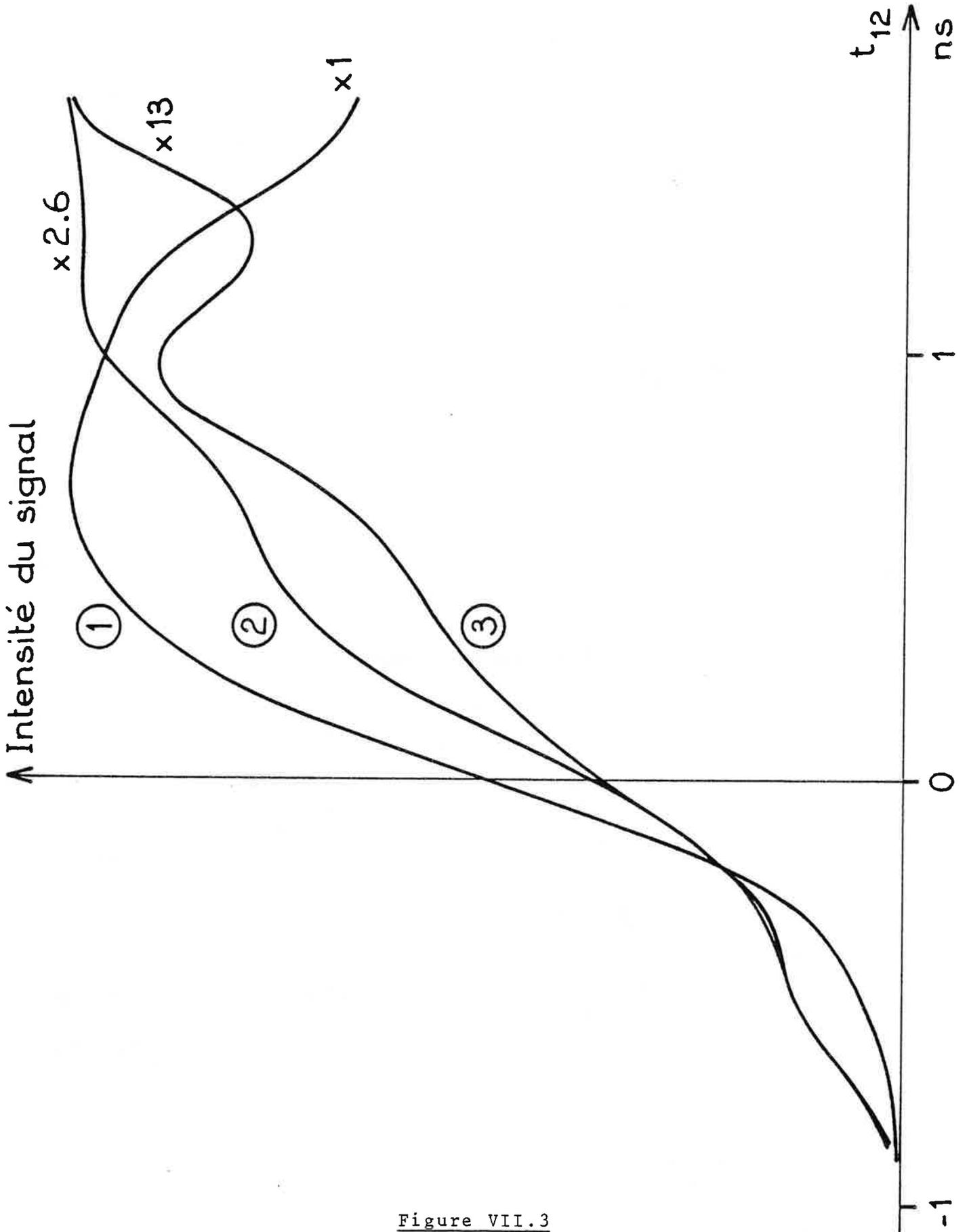


Figure VII.3

normalisée :

$$W(t_{12}) = \frac{1}{2} \left(1 + \operatorname{erf} \left(kt_{12} \sqrt{RT/m} \right) \right)$$

Les profils expérimentaux s'écartent sensiblement de cette courbe, et ce d'autant plus que les impulsions excitatrices sont plus intenses. En particulier le signal décroît en fonction de t_{12} , après un maximum proche de la position $t_{12} = 0$. On est tenté de caractériser cette décroissance à l'aide du taux de relaxation par saturation γ_s introduit au chapitre IV : $\gamma_s = \chi^2 \tau_c$. On constate en effet que le produit $\gamma_s t_{12}$ est de l'ordre de l'unité, à mi-hauteur des profils expérimentaux ($\gamma_s t_{12} = 2$ et 1.5 pour les courbes 1 et 2 respectivement). Par ailleurs le fond lentement variable en fonction de t_{12} , non représenté sur la figure, est sensiblement inférieur à ce que prévoient les expressions du chapitre V.

La décroissance du signal d'écho en fonction de t_{12} , au delà du maximum localisé en $t_{12} = 0$, a été observée récemment dans une expérience assez proche de la notre [21]. Le processus étudié, présenté comme un mélange à quatre ondes en lumière incohérente, met en jeu deux impulsions excitatrices seulement. La deuxième impulsion cumule les fonctions dévolues dans notre travail aux impulsions 2 et 3. Elle est chargée de sonder la perturbation qu'elle a contribué à construire dans la population des niveaux atomiques. La confusion des rôles rend plus délicate l'analyse de cette expérience. Son interprétation reste incertaine.

VII.3. ETUDE EN POLARISATIONS CROISEES

La figure VII.3 présente les profils expérimentaux obtenus en polarisations croisées pour les mêmes intensités lumineuses que les profils de la figure VII.1. La configura-

tion de polarisations croisées est définie au paragraphe VI.2.5. L'effet de puissance est ici nettement moins marqué que sur la figure VII.1. Il ne semble perceptible que sur le profil n°1. Au voisinage de $t_{12} = 0$ le profil n°1 s'écarte peu de la forme attendue. L'analyse des profils 2 et 3, obtenus à plus faible intensité d'excitation, est compliquée par une structure oscillatoire à une fréquence de l'ordre de 1.3 GHz. Aucun battement entre transitions classiques voisines ne semble susceptible de se produire à cette fréquence. Une corrélation parasite à l'intérieur des impulsions excitatrices semble plus vraisemblablement responsable de la structure observée. Il reste que, débarrassés de cette structure, les profils 2 et 3 présentent autour de $t_{12} = 0$ une variation en fonction de t_{12} plus lente que prévue.

VII.4. MOYENNE STATISTIQUE ET ESPERANCE MATHEMATIQUE

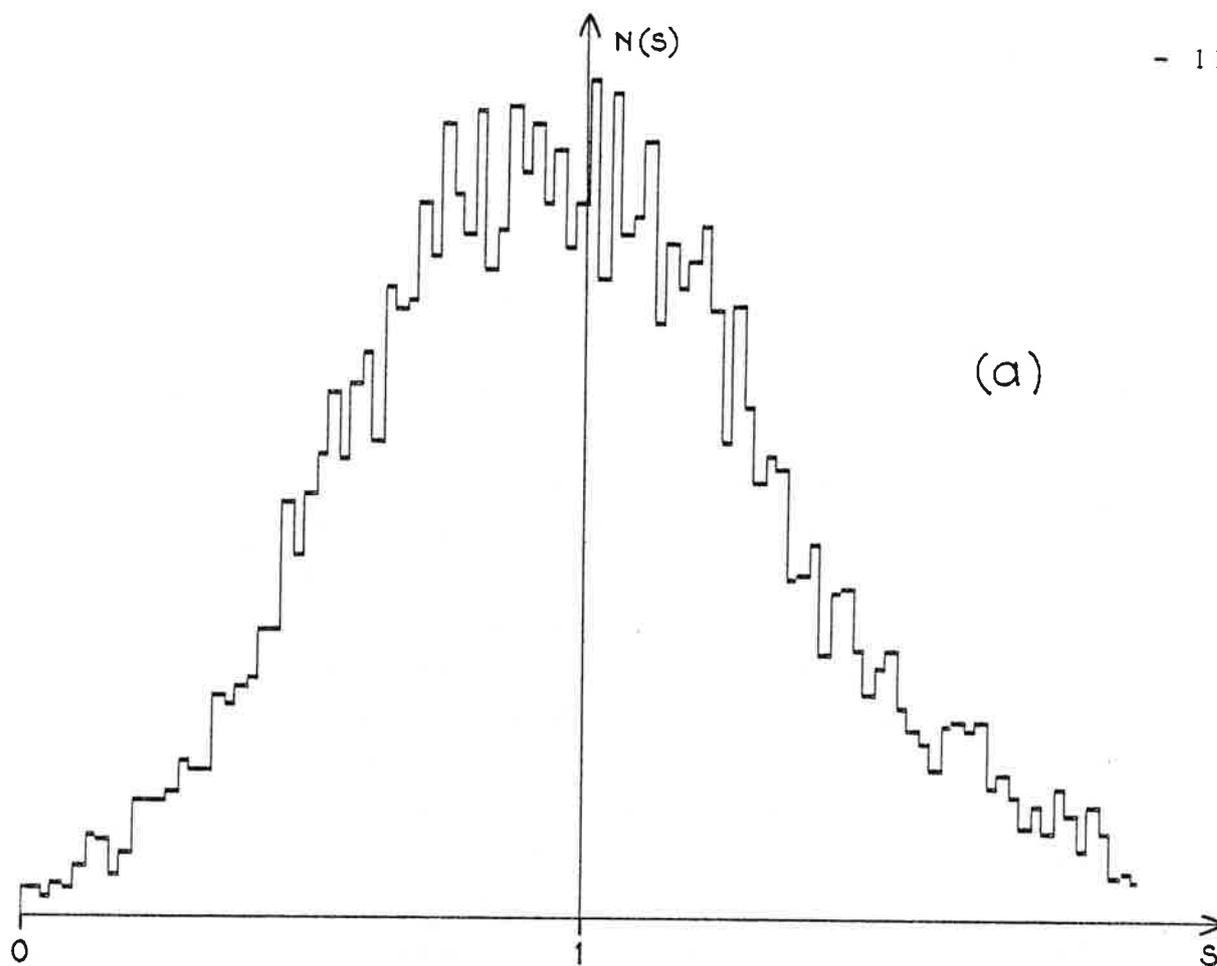
Dans les paragraphes précédents, nous identifions l'intensité moyenne du signal à son espérance mathématique. L'intensité moyenne du signal pour une valeur donnée de t_{12} est obtenue par le calcul de la moyenne des réalisations successives du signal lors des passages successifs de la ligne à retard variable à la position correspondant à la valeur donnée de t_{12} . La moyenne ne s'identifie à l'espérance mathématique qu'à la limite d'un nombre infini de réalisations. L'identification que nous opérons pour un nombre fini de réalisations est entachée d'une incertitude. Connaissant le nombre de réalisations, nous pouvons déterminer cette incertitude à l'aide de la loi de probabilité de l'intensité du signal.

Nous admettons que la loi de probabilité coïncide avec la fonction de distribution des mesures réalisées au cours d'un enregistrement. Dans le montage utilisé précédemment, on recueille à la sortie de l'intégrateur à porte variable un signal déjà moyenné. Afin de recueillir des signaux individuels, non moyennés, nous remplaçons l'intégrateur par un dispositif échantillonneur bloqueur (PAR/EGG 162+163). Nous disposons en sortie de cet appareil d'une tension proportionnelle à l'aire du signal d'écho de photon stimulé et dont le niveau est maintenu constant pendant 1/15 s, jusqu'à la détection du signal suivant. La figure VII.4 (a) représente l'histogramme des mesures qui correspondent au profil de la figure VII.4 (b). L'intervalle de temps de 2.53 ns parcouru par la variable t_{12} est divisé en 152 canaux. La valeur moyenne du signal mesuré dans le canal i étant désignée par \bar{I}_i , la valeur normalisée d'un signal d'intensité I_i recueilli dans le canal i est notée $S = I_i / \bar{I}_i$. Cette quantité est portée en abscisse de l'histogramme tandis que le nombre $N(S)$ de mesures de même intensité normalisée S est porté en ordonnée. Nous admettons que cet histogramme représente la loi de probabilité de l'intensité du signal. Nous supposons ainsi que cette loi est indépendante de t_{12} .

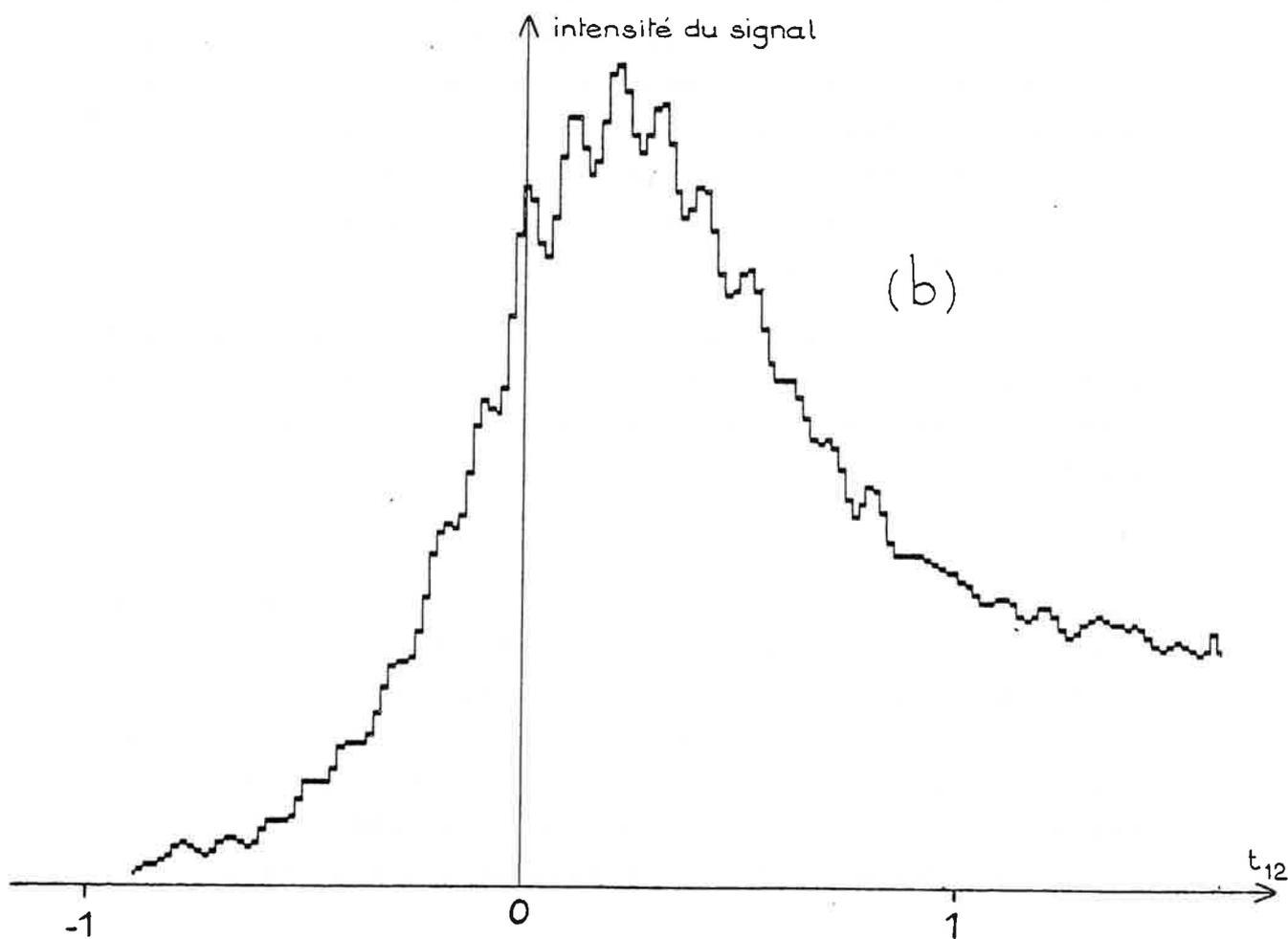
Lorsque n variables aléatoires mutuellement indépendantes $X_1, X_2 \dots X_n$ suivent toutes une même loi de probabilité caractérisée par une moyenne m et une variance σ^2 , la quantité :

$$Y = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n X_j$$

est elle-même une variable aléatoire de moyenne m et de variance σ^2/n . La variance σ de la variable S considérée dans notre expérience, est d'après l'histogramme de la figure VII.4 : $\sigma \approx .4$, dans l'hypothèse où la loi de probabilité est assimilée à une loi normale. L'intensité moyenne \bar{I}_i du signal recueilli dans le canal i est calculée à partir de $n = 60$ mesures environ. On en conclut que l'incertitude sur



(a)



(b)

Figure VII.4

la détermination de l'espérance mathématique $E(I_i)$ est de l'ordre de $\sigma \bar{I}_i / \sqrt{n} = .05 \bar{I}_i$.

Les histogrammes des mesures effectuées au cours des enregistrements de la figure VII.1 sont représentés sur la figure VII.5. Rappelons que les conditions expérimentales dans lesquelles sont effectués ces trois enregistrements ne diffèrent que par l'atténuation des deux premières impulsions excitatrices. En particulier la source lumineuse possède les mêmes propriétés statistiques au cours de ces trois enregistrements. On observe que la largeur des histogrammes est une fonction décroissante de l'intensité des impulsions excitatrices. On conçoit alors que la valeur moyenne du signal est d'autant plus sensible aux structures parasites des impulsions excitatrices que l'intensité de celles-ci est plus faible. Les mesures associées aux enregistrements de la figure VII.1 sont effectuées à l'aide d'un intégrateur à porte variable. Le traitement que fait subir cet appareil aux signaux détectés nous interdit d'identifier les histogrammes de la figure VII.5 aux lois de probabilité de l'intensité des signaux. L'effet de l'intégrateur est illustré par la différence de largeur entre deux histogrammes obtenus dans des conditions de puissance voisines, celui de l'enregistrement 2 de la figure VII.1 et celui de l'enregistrement de la figure VII.4 (b). Seul le signal du premier enregistrement est traité par l'intégrateur.

VII.5. BATTEMENTS QUANTIQUES ET TEMPS D'AUTOCORRELATION

L'enregistrement de la figure VII.4 (b) présente des oscillations régulières à une fréquence voisine de 10 GHz. Ainsi se manifeste sans doute un battement entre les transitions reliées aux deux sous-niveaux de structure hyperfine du fondamental $6s$ (cf. figure VI.1). La manifestation de ce battement dans le profil expérimental indique que la largeur spec-

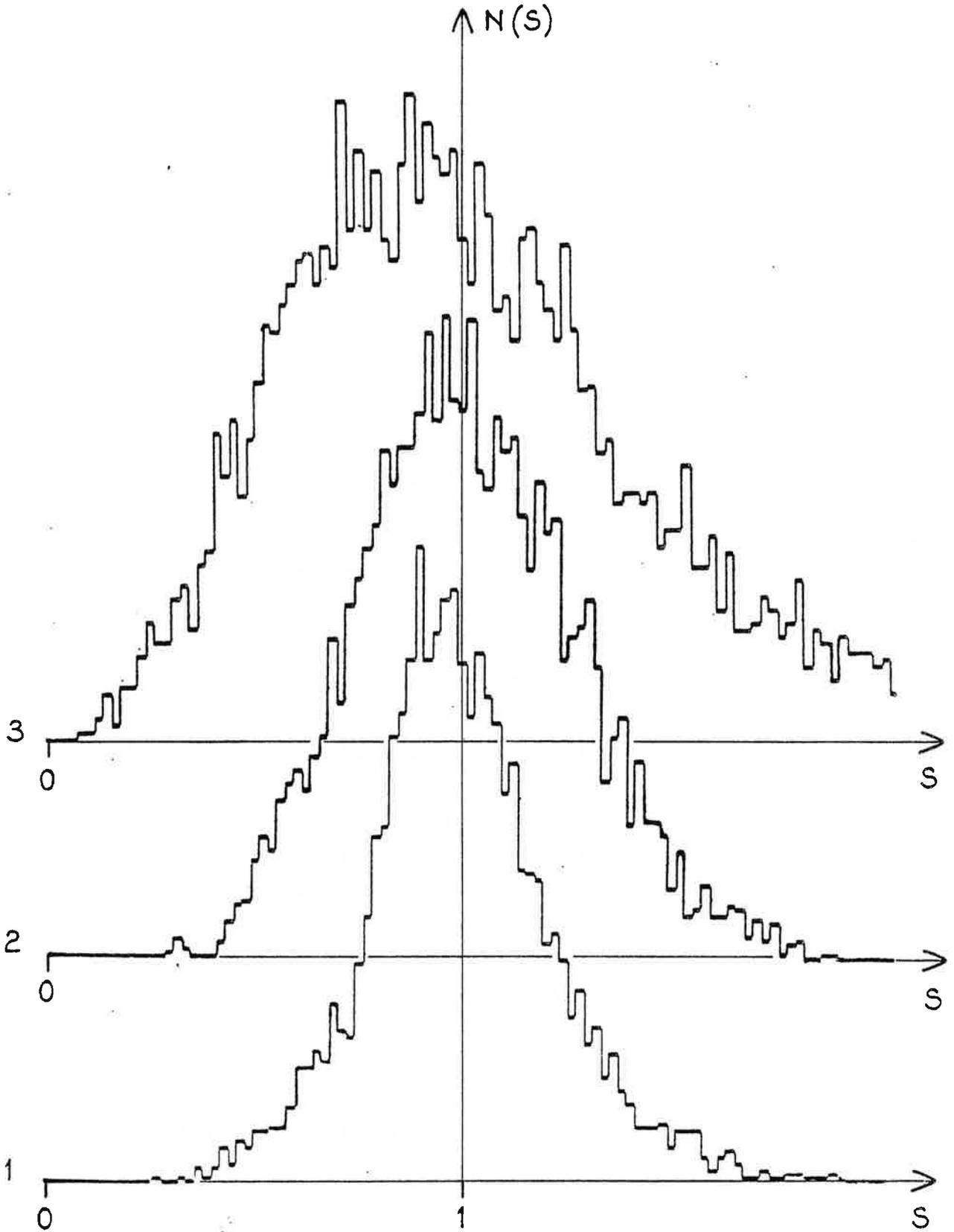


Figure VII.5

trale des impulsions excitatrices excède la fréquence du battement. En d'autres termes, le temps d'autocorrélation est inférieur à la période de battement, soit 100 ps. La valeur du paramètre de relaxation γ_s semble donc surestimée. La modulation du profil à 10 GHz est peu marquée. Un calcul détaillé serait nécessaire pour préciser le lien entre le temps d'autocorrélation et la profondeur de modulation.

VIII. CONCLUSION

VIII. CONCLUSION

Ce travail représente un premier pas vers la maîtrise de méthodes de spectroscopie cohérente en lumière incohérente. Notre ambition initiale était de réaliser l'excitation cohérente d'un domaine spectral d'étendue supérieure à l'inverse de la durée des impulsions excitatrices, d'en obtenir la signature, de déterminer par cette voie la forme du profil inhomogène d'une transition atomique et d'en déduire la fonction de distribution des vitesses.

Nous appuyant sur un calcul perturbatif, nous avons établi le bien-fondé d'un tel programme. Dans une expérience de démonstration sur la transition 6s-7p de Cs, en phase vapeur à l'équilibre thermodynamique, nous avons pu réaliser l'excitation cohérente sur toute la largeur de la distribution de vitesse à l'aide d'impulsions lumineuses de durée très supérieure à l'inverse de la largeur inhomogène. Cependant, dans des conditions de puissance lumineuse élevée, les profils expérimentaux obtenus présentent des distorsions importantes par rapport à la forme prévue par le calcul perturbatif. Nous avons ainsi été conduits à examiner les conditions de résolution des équations de Bloch à coefficients aléatoires. Nous avons pu déterminer la spécificité de notre problème. Elle tient à ce que, dans les échos de photon produits par des impulsions successives cohérentes entre elles et distantes de t_{12} , la mémoire des caractéristiques du champ se maintient sur un intervalle de temps t_{12} qui peut être très supérieur au temps d'autocorrélation τ_c des impulsions lumineuses. En dehors du voisinage de $t_{12} = 0$, cette situation originale nous interdit d'appliquer aucune des méthodes connues de résolution des équations de Bloch à coefficients aléatoires. Ces méthodes supposent toutes en effet la perte de mémoire des caractéristiques du champ, au delà d'une durée τ_c . A défaut d'une représentation plus complète de l'excitation, nous supposons qu'une impul-

sion lumineuse de durée τ_L peut se décomposer en tranches spectrales de largeur τ_L^{-1} , incohérentes entre elles, et que chaque tranche spectrale se comporte comme une impulsion limitée par transformée de Fourier de durée τ_L . Au voisinage de $t_{12} = 0$, la variation du signal en fonction de la puissance, calculée dans le cadre de cette représentation, est proche de celle que prévoient les méthodes connues de résolution des équations de Bloch à coefficients aléatoires. En revanche, cette représentation est impuissante à rendre compte de l'évolution que manifeste, suivant l'intensité lumineuse excitatrice, la forme des profils enregistrés en fonction de t_{12} .

La dégradation de la qualité des enregistrements à faible intensité, particulièrement sensible en polarisations croisées, nous a contraint à limiter nos investigations expérimentales à des conditions de champ intense. L'étude de la variation de la dispersion des mesures en fonction de l'intensité du champ semble indiquer que le signal est d'autant plus sensible aux structures parasites dans le spectre des impulsions excitatrices que le champ est plus faible.

L'étude des transitoires cohérents en lumière incohérente pourrait se poursuivre dans deux directions complémentaires. L'étude théorique en champ intense pourrait s'orienter vers la résolution numérique de l'équation de Bloch à coefficients aléatoires, malgré le grand nombre des variables (position et vitesse des atomes, intervalle entre les impulsions) qui alourdissent le calcul. En champ faible, nous devons viser à un meilleur contrôle expérimental des caractéristiques spectrales des impulsions excitatrices. C'est en effet seulement en régime de champ faible que la forme du profil en fonction de t_{12} peut être en principe indépendante de l'intensité du champ et que le processus envisagé peut se prêter à d'éventuelles applications. Il faut entendre par régime de champ faible une situation où le taux de relaxation par puissance $\gamma_s = \chi^2 \tau_c$ est très inférieur à

toutes les quantités de même dimension (taux de relaxation, largeurs spectrales) dont l'étude serait visée dans une telle expérience. Notre montage permet en principe de déterminer une distribution de vitesse atomique par échantillonnage. En raison de la brièveté de la séquence impulsionnelle mise en jeu, nous devons avoir accès à la distribution de vitesse de produits de photo-fragmentation avant la thermalisation collisionnelle de leur mouvement de translation [51]. Parmi les autres applications potentielles, nous avons déjà évoqué en introduction l'étude des grands changements de vitesse au cours de transitions collisionnelles entre niveaux atomiques, ainsi que l'étude de relaxations rapides. Par ailleurs, le processus envisagé permet la détection de battements de fréquence entre transitions atomiques ainsi que nous l'avons observé dans le cas des transitions associées aux sous-niveaux de structure hyperfine du fondamental de Cs. Des fréquences très élevés, de l'ordre du THz [52] semblent ainsi accessibles. L'intérêt et la spécificité de telles observations pourraient être discutés à la lumière de récents travaux où les battements quantiques entre modes normaux de l'anthracène sont détectés par fluorescence [53].

APPENDICES

APPENDICE A

CALCUL PERTURBATIF DU SIGNAL D'ECHO STIMULE EN LUMIERE IN-COHERENTE

Par substitution de l'équation (III.11) dans l'équation (III.18) on obtient :

$$\begin{aligned} \langle W_{\vec{k}_e} \rangle &\propto \int_0^\infty d\tau \int d^3v \int d^3v' n_{ab}^{(o)}(\vec{v}) n_{ab}^{(o)}(\vec{v}') \langle S^*(\vec{k}_o \vec{v}) S(\vec{k}_o \vec{v}') \rangle \times \\ &\times \exp[-i(\vec{k}_3 \tau - \vec{k}_o t_{12}) \vec{v} - i(\vec{k}_3 \tau - \vec{k}_o t_{12}) \vec{v}'] \end{aligned} \quad (A.1)$$

$$\begin{aligned} \langle W_{\vec{k}_e'} \rangle &\propto \int_0^\infty d\tau \int d^3v \int d^3v' n_{ab}^{(o)}(\vec{v}) n_{ab}^{(o)}(\vec{v}') \langle S^*(\vec{k}_o \vec{v}) S(\vec{k}_o \vec{v}') \rangle \times \\ &\times \exp[-i(\vec{k}_3 \tau + \vec{k}_o t_{12}) \vec{v} - i(\vec{k}_3 \tau + \vec{k}_o t_{12}) \vec{v}'] \end{aligned} \quad (A.2)$$

Nous supposons négligeable le déphasage par effet Doppler transverse. Nous fixons l'axe Oz dans la direction de \vec{k}_o , qui dans cette approximation se confond avec \vec{k}_3 . On obtient :

$$\begin{aligned} \langle W_{\vec{k}_e} \rangle &\propto \int_0^\infty d\tau \int dv_z \int dv_z' n_{ab}^{(o)}(v_z) n_{ab}^{(o)}(v_z') \langle S^*(\Delta) S(\Delta') \rangle \times \\ &\times \exp[i(\Delta' - \Delta)(\tau - t_{12})] \end{aligned} \quad (A.3)$$

où $\Delta = kv_z$ et $\Delta' = kv_z'$

Une expression analogue est obtenue pour $\langle W_{\vec{k}_e'} \rangle$. Le développement de $\langle S^*(\Delta) S(\Delta') \rangle$ s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle S^*(\Delta) S(\Delta') \rangle &= \langle I_1(\Delta) I_1^*(\Delta) I_1(\Delta') I_1^*(\Delta') \rangle \\ &= \langle |I_1(\Delta)|^2 \rangle \langle |I_1(\Delta')|^2 \rangle \left[1 + \frac{\langle I_1(\Delta) I_1^*(\Delta') \rangle \langle I_1(\Delta') I_1^*(\Delta) \rangle}{\langle |I_1(\Delta)|^2 \rangle \langle |I_1(\Delta')|^2 \rangle} \right] \end{aligned}$$

où $I_1(\Delta) = \int dt \chi_1(t) e^{-i\Delta t}$

La fonction $I_1(\Delta)$ a une interprétation physique simple : c'est la composante spectrale de l'impulsion laser qui excite à résonance le domaine spectral de largeur $1/\tau_L$ centré en $v_z = \Delta/k$. Les expressions des espérances mathématiques mises en jeu dans (A.4) sont :

$$\langle |I_1(\Delta)|^2 \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} dt |\chi_1^0(t)|^2 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau g(\tau) e^{-i\Delta\tau} \quad (\text{A.5})$$

$$\langle I_1(\Delta) I_1(\Delta') \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} dt |\chi_1^0(t)|^2 e^{it(\Delta'-\Delta)} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau g(\tau) e^{-i\Delta\tau} \quad (\text{A.6})$$

Par substitution dans (A.4) on obtient :

$$\langle S^*(\Delta) S(\Delta') \rangle = \langle S(\Delta) \rangle \langle S(\Delta') \rangle [1 + \psi(|\Delta - \Delta'|)] \quad (\text{A.7})$$

$$\text{où } \psi(|\Delta - \Delta'|) = \left| \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} dt |\chi_1^0(t)|^2 e^{it(\Delta - \Delta')}}{\int dt |\chi_1^0(t)|^2} \right| \quad (\text{A.8})$$

Dans cette expression $\langle S(\Delta) \rangle$ est donné par l'équation (A.5). C'est une fonction proportionnelle à la transformée Fourier de la fonction d'autocorrélation. Sa largeur en Δ est donc de l'ordre de τ_c^{-1} . La fonction $\psi(|\delta|)$ est la transformée de Fourier de l'enveloppe de l'impulsion. Sa largeur en δ est donc de l'ordre de τ_L^{-1} . Compte tenu de ce que $\tau_L^{-1} \ll k\bar{v} \ll \tau_c^{-1}$, on a :

$$E(\Delta) = n_{ab}^{(0)} \langle S(\Delta) \rangle \approx \langle S(0) \rangle n_{ab}^{(0)}(v_z) \quad (\text{A.9})$$

$$n_{ab}^{(0)}(v_z) n_{ab}^{(0)}(v_z') \langle S^*(\Delta) \rangle \langle S(\Delta') \rangle \psi(|\Delta - \Delta'|) \approx [E(\Delta)]^2 \psi(|\Delta - \Delta'|) \quad (\text{A.10})$$

La quantité $E(\Delta)$ apparaît comme la contribution au signal du champ émis par les atomes de vitesse v_z . En fonction de cette quantité, l'équation (A.3) s'écrit, compte tenu de l'équation (A.7) :

$$\langle W_{\vec{k}_e} \rangle = \int_0^\infty d\tau \left\{ \left[\int dv_z E(\Delta) \exp -i\Delta(\tau - t_{12}) \right]^2 + \int dv_z [E(\Delta)]^2 \int dv'_z \psi(|\Delta - \Delta'|) \exp i(\Delta' - \Delta)(\tau - t_{12}) \right\} \quad (\text{A.11})$$

Dans le premier terme de cette expression, les champs élémentaires émis par les différentes classes de vitesses s'additionnent en phase pour former le champ total :

$\int dv_z E(\Delta) \exp -i\Delta(\tau - t_{12})$. Le deuxième terme en revanche représente la somme des puissances rayonnées par les différentes classes de vitesses, regroupées en domaines mutuellement incohérents de largeur λ/τ_L .

En notant que, d'après l'équation (A.8) :

$$\left[\int dt |\chi_1^0(t)|^2 \right]^2 \int d\Delta \psi(|\Delta|) \exp i\Delta T = 2\pi \int dt |\chi_1^0(t)|^2 |\chi_1^0(t+T)|^2 \quad (\text{A.12})$$

on aboutit finalement à l'équation (III.19).

APPENDICE B

B.1. CALCUL DE $\langle |I_1(\Delta)|^{2n} |I_1(\Delta')|^{2p} \rangle$

L'expression à calculer se développe sous la forme :

$$\langle |I_1(\Delta)|^{2n} |I_1(\Delta')|^{2p} \rangle = \int dt_1 \dots \int dt_{2n+2p} \quad (B.1)$$

$$\langle A_1 A_2 \dots A_{n+p} A_{n+p+1}^* \dots A_{2n+2p}^* \rangle$$

où

$$A_q = \chi_1(t_q) \exp(-i\Delta t_q) \quad \text{pour } 1 \leq q \leq n$$

$$A_q = \chi_1(t_q) \exp(-i\Delta' t_q) \quad \text{pour } n+1 \leq q \leq n+p$$

$$A_q^* = \chi_1^*(t_q) \exp(+i\Delta t_q) \quad \text{pour } n+p+1 \leq q \leq 2n+p$$

$$A_q^* = \chi_1^*(t_q) \exp(+i\Delta' t_q) \quad \text{pour } 2n+p+1 \leq q \leq 2n+2p$$

Dans l'hypothèse d'un processus gaussien le théorème de factorisation permet d'écrire cette expression sous la forme :

$$\langle |I_1(\Delta)|^{2n} |I_1(\Delta')|^{2p} \rangle = \int dt_1 \dots dt_{2n+2p} \sum_P \langle A_{P(1)} A_{n+p+1}^* \rangle \times$$

$$\times \langle A_{P(2)} A_{n+p+2}^* \rangle \dots \langle A_{P(n+p)} A_{2n+2p}^* \rangle \quad (B.2)$$

où la somme s'effectue sur les permutations des $n+p$ objets A_q . Le dénombrement des permutations est facilité par une représentation graphique (figure B.1). Sur la ligne supérieure sont représentés les $n+p$ A_q et sur la ligne inférieure les $n+p$ A_q^* . On note que :

Echange de k éléments

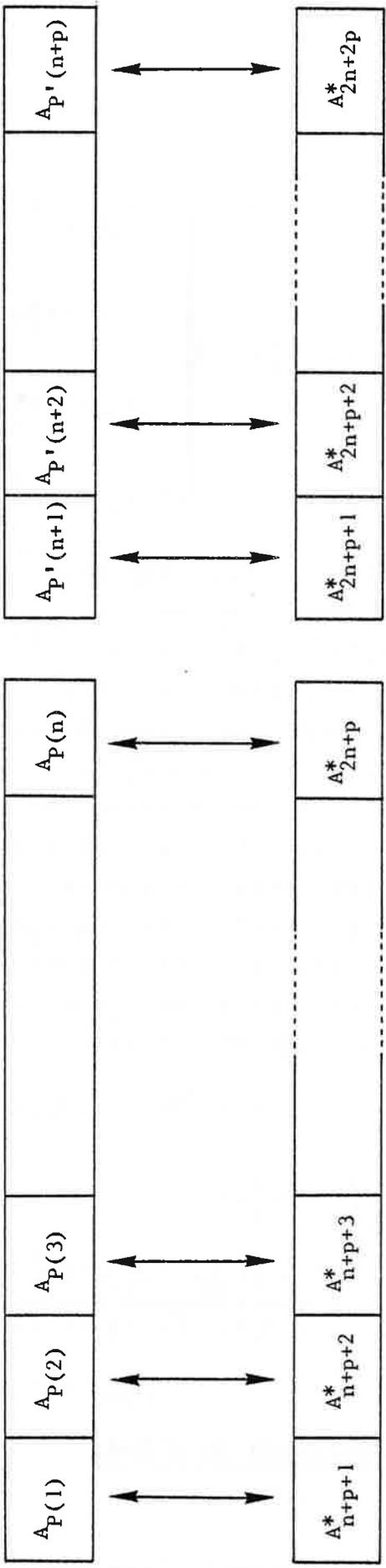
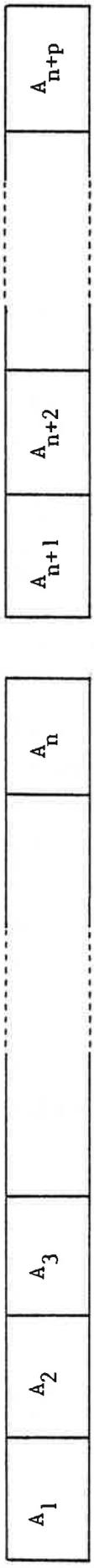


Figure B1

REFERENCES

REFERENCES

- [1] R. Kachru, T.J. Chen, S.R. Hartmann, T.W. Mossberg, P.R. Berman, Phys. Rev. Lett. 47, 902 (1981)
- [2] J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, Phys. Rev. Lett. 52, 2034 (1984) ; Phys. Rev. A 32, 1624 (1985)
- [3] A.G. Yodh, J. Golub, T.W. Mossberg, Phys. Rev. A 32, 844 (1985)
- [4] A.P. Ghosh, C.D. Nabors, M.A. Attili, J.E. Thomas, Phys. Rev. Lett. 54, 1794 (1985)
- [5] S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, M. Matsuoka, Phys. Rev. A 29, 2286 (1984)
- [6] H. Nakatsuka, M. Tomita, M. Fujiwara, S. Asaka, Opt. Comm. 52, 150 (1984)
- [7] M. Fujiwara, R. Kuroda, H. Nakatsuka, J.O.S.A.B 2, 1634 (1985)
- [8] I.I. Rabi, J.R. Zacharias, S. Millman, P. Kusch, Phys. Rev. 53, 318 (1938)
- [9] N.F. Ramsey, Phys. Rev. 78, 695 (1950)
- [10] E.L. Hahn, Phys. Rev. 80, 580 (1950)
- [11] N. Bloembergen, E.M. Purcell, R.V. Pound, Phys. Rev. 73, 679 (1948)
- [12] N.A. Kurnit, I.D. Abella, S.R. Hartmann, Phys. Rev. Lett. 13, 567 (1964)
- [13] I.D. Abella, N.A. Kurnit, S.R. Hartmann, Phys. Rev. 141, 391 (1966)
- [14] J.D. Jackson, Classical Electrodynamics, Wiley (1975)
- [15] R.G. Brewer, E.L. Hahn, Scientific American 251, 42 (1984)

- [16] R. Kachru, T.W. Mossberg, S.R. Hartmann, J. Phys. B :
Atom. Molec. Phys. 13, L363 (1980)
- [17] R. Kachru, T.J. Chen, T.W. Mossberg, S.R. Hartmann,
Phys. Rev. A25, 1546 (1982)
- [18] P.R. Berman, J.M. Levy, R.G. Brewer, Phys. Rev. A 11,
1668 (1975)
- [19] T.W. Mossberg, A. Flusberg, R. Kachru, S.R. Hartmann,
Phys. Rev. Lett. 42, 1665 (1979)
- [20] R. Kachru, T.W. Mossberg, S.R. Hartmann, Opt. Comm. 30,
57 (1979)
- [21] R. Beach, B. Brody, S.R. Hartmann, Phys. Rev. A 27,
2925 (1983)
- [22] A. Flusberg, T.W. Mossberg, R. Kachru, S.R. Hartmann,
Phys. Rev. Lett. 41, 305 (1978)
- [23] K.P. Leung, T.W. Mossberg, S.R. Hartmann, Opt. Comm. 43,
145 (1982)
- [24] M. Fujita, H. Nakatsuka, H. Nakanishi, M. Matsuoka,
Phys. Rev. Lett. 42, 974 (1979)
- [25] J.A. Shirley, R.J. Hall, A.C. Eckbreth, Opt. Lett. 5,
380 (1980)
- [26] Y. Prior, Appl. Opt. 19, 1741 (1980)
- [27] T.W. Mossberg, A. Flusberg, R. Kachru, S.R. Hartmann,
Phys. Rev. Lett. 39, 1523 (1977)
- [28] R.J. Glauber, Phys. Rev. 131, 2766 (1963)
- [29] M. Morita, T. Yajima, Phys. Rev. A 30, 2525 (1984)
- [30] A.I. Burshtein, Zh. Eksp. Teor. Phys. 49, 1362 (1965)
[Sov. Phys. - JETP 22, 939 (1966)] ; A.I. Burshtein,
Y.S. Oseledchik, *ibid.* 51, 1071 (1966) [*ibid.* 24, 716
(1967)] ; A.I. Burshtein, *ibid.* 48, 850 (1965)[*ibid.* 21,
567 (1965)] ; L.D. Zusman, A.I. Burshtein, *ibid.* 61, 976,
(1971) [*ibid.* 34, 520 (1972)]

- [31] B.W. Shore, J.O.S.A.B. 1, 176 (1984)
- [32] K. Wodkiewicz, B.W. Shore, J.H. Eberly, Phys. Rev. A 30, 2390 (1984)
- [33] K. Wodkiewicz, J.H. Eberly, Phys. Rev. A 32, 992 (1985)
- [34] R.C. Bourret, Can. J. Phys. 43, 619 (1965) ; 44, 2519 (1966)
- [35] R.F. Fox, Phys. Reports 48, 181 (1978)
- [36] N.G. Van Kampen, Stochastic Processes in Physics and Chemistry, North-Holland (1981)
- [37] F.J. Dyson, Phys. Rev. 75, 486 (1949)
- [38] W. Magnus, Commun. Pure Appl. Math. 7, 649 (1954)
- [39] R. Beach, D. Debeer, S.R. Hartmann, Phys. Rev. A 32, 3467 (1985)
- [40] I.E. Farquhar, Ergodic Theory in Statistical Mechanics Interscience Publishers, John Wiley (1964) Londres
- [41] A. Brissaud, U. Frisch, J. Math. Phys. 15, 524 (1974)
- [42] I.S. Gradshteyn, I.M. Ryzhik, Table of Integrals Series and Products, Academic Press (1965)
- [43] H. Bucka, H. Kopferman, E.W. Otten, Ann. Phys. VII F 4, 39 (1959)
- [44] D. Feiertag, A. Sahm, G. zu Putlitz, Z. Physik 255, 93 (1972)
- [45] J.B. Taylor, I. Langmuir, Phys. Rev. 51, 753 (1937)
- [46] J. Marek, K. Niemax, J. Phys. B L483 9 (1976)
- [47] L. Agnew, Bull. Am. Phys. Soc. 11, 327 (1966)
- [48] J.U. White, J. Opt. Soc. Am. 32, 285 (1942)
- [49] A.C.G. Mitchell, M.W. Zemansky, Resonance Radiation and Excited Atoms, Cambridge University Press (1971)
- [50] I.I. Sobel'man, Introduction to theory of atomic spectra, Pergamon Press (1972)

- [51] M. Defour, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, J. Opt. Soc. Am. B 3, 544 (1986)
- [52] J. Golub, T.W. Mossberg, à paraître dans Optics Letters
- [53] P.M. Felker, A.H. Zewail, J. Chem. Phys. 82, 2975 (1985).

Ce présent travail a été réalisé au Laboratoire Aimé Cotton et je remercie S. Liberman de m'y avoir accueilli pour effectuer ma thèse.

Je tiens à remercier très vivement l'équipe des échos de photon, sans laquelle ce travail n'aurait pas vu le jour ;

J-L. Le Gouët qui a dirigé cette thèse, m'a fait profiter à tous moments de sa très grande compétence et de son amitié.

J-C. Keller, qui a su si souvent m'aider avec patience et gentillesse dans mes premiers pas.

Je leur dois de terminer cette thèse dans le temps que nous nous étions donné et souhaite leur exprimer ma profonde reconnaissance.

J'exprime également ma gratitude envers P. R. Berman dont les travaux ont été utiles dans nos recherches et qui m'a fait l'honneur de faire partie du jury.

J'adresse, enfin, mes remerciements à l'ensemble du Laboratoire Aimé Cotton, chercheurs, ingénieurs, techniciens, administratives, qui ont contribué au bon déroulement de cette étude par une aide permanente et un accueil chaleureux. Plus particulièrement, je tiens à remercier A. Richard qui a permis l'informatisation de l'expérience et nous a grandement facilité la tâche.

A tous, ainsi qu'à J. Dupont-Roc, A. Beswick pour l'intérêt qu'ils ont pris à cette thèse en acceptant de faire partie du jury, je tiens à exprimer mes sincères remerciements.

Nom : Defour

Prénom : Martin

Titre : Transitoires Cohérents
en Lumière Incohérente

RESUME

Ce mémoire présente l'analyse théorique et expérimentale d'un processus d'écho de photon stimulé produit par une séquence d'impulsions lumineuses à large bande spectrale.

Le temps de cohérence τ_c de ces impulsions est très inférieur à leur durée τ_L . Lorsque les deux premières impulsions sont issues de la même source, la limite de résolution temporelle est donnée par τ_c et non par τ_L . Nous appliquons cette propriété à l'étude d'une distribution de vitesse atomique caractérisée par une largeur Doppler ω_D telle que :

$$\tau_c \ll \omega_D^{-1} \ll \tau_L$$

Dans l'expérience envisagée, le temps caractéristique ω_D^{-1} associé à la largeur Doppler se mesure alors avec une résolution τ_c .

Les effets de puissance sont examinés en détail. L'analyse théorique s'appuie sur la théorie des équations différentielles à coefficients aléatoires. Il est établi qu'aucune des méthodes standards de résolution de ces équations ne s'applique à la situation envisagée.

Les phénomènes transitoires cohérents produits par des impulsions de lumière incohérente semblent adaptés à l'étude de relaxations rapides, de battements quantiques de fréquence élevée, ainsi qu'à l'échantillonnage rapide d'une largeur de raie inhomogène.

MOTS CLES : échos de photon, mélange à quatre ondes, excitation large bande, équation différentielle stochastique.