

Orsay  
n° d'ordre:

Université de Paris-Sud  
Centre d'ORSAY

**THESE**

présentée  
pour obtenir

**LE GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCE**

Par

**Mohamed Aziz BOUCHENE**

Sujet:

**Dipôles optiques en champs stochastiques intenses**

soutenue le 05 juin 1992 devant la commission d'Examen

MM

P. BRECHIGNAC

Président

C. SALOMON

F. KAJZAR

J.C. KELLER

J.L. LE GOUET

P.R. BERMAN





## Remerciements

Ce travail a été effectué au laboratoire Aimé Cotton au sein du groupe des "échos de photon". Je remercie Jean Claude Keller de m'y avoir accueilli avec gentillesse.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à Jean Louis Le Gouët qui a dirigé ce travail avec efficacité et veillé à ce que ma thèse se déroule toujours dans les meilleures conditions. Son dynamisme , son enthousiasme et sa remarquable imagination ont été un exemple pour moi. Un grand merci encore.

Paul Tchénio a été d'une disponibilité permanente, il m'est toujours venu en aide quand "ça ne tournait pas rond" sans ménager nullement ses efforts. J'ai beaucoup apprécié sa patience et sa gentillesse. Qu'il en soit sincèrement remercié.

Je remercie Anne Débarre qui a suivi ce travail avec intérêt et Alain Richard qui a assuré l'informatisation de l'expérience.

Je ne saurais oublier de remercier Messieurs P. R. Berman et V. Finkelstein pour leur collaboration théorique fructueuse.

Mes remerciements vont à Monsieur P. Bréchnac qui a eu la gentillesse d'accepter de présider ce jury et à Messieurs C. Salomon et F. Kajzar de l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail en acceptant d'en être les rapporteurs. Je remercie également le professeur P.R. Berman pour sa participation au jury .

Un chaleureux merci pour Nadia et Noureddine qui m'ont prodigué conseils et encouragements tout au long de cette thèse.

Je tiens enfin à témoigner ma reconnaissance à toutes les personnes du laboratoire qui ont participé à ce travail et que je n'ai pas cité.

## SOMMAIRE

Introduction	9
<b>Chapitre I - EXCITATION RESONNANTE DE TRANSITOIRES OPTIQUES COHERENTS DANS UNE VAPEUR ATOMIQUE</b>	<b>13</b>
I)- Introduction	13
II)- Diffusion Rayleigh par une vapeur atomique en équilibre thermodynamique	14
1)- Equations d'évolution	15
2)- Champ rayonné	17
III)- Diffraction par un réseau spatial de population	20
1)- Réseau de Bragg inscrit	20
2)- Diffraction d'une impulsion sonde	21
3)- Déroulement temporel du signal	25
IV)- Diffraction par un réseau spatial de cohérence Zeeman	27
1)- Réseau de Bragg inscrit	27
2)- Diffraction de l'onde sonde	32
<b>Chapitre II - ANALYSE DES SIGNAUX TRANSITOIRES COHERENTS INDUITS PAR DES IMPULSIONS STOCHASTIQUES</b>	<b>33</b>
I)- Introduction	33
II)- Modèle du champ	34
III)- Expression du signal émis	35
IV)- Energie du signal émis	37
V)- Technique de corrélation croisée d'amplitude	40
<b>Chapitre III - EFFETS DE PUISSANCE DANS UN SYSTEME A DEUX NIVEAUX</b>	<b>45</b>
I)- Introduction	45
II)- Diffraction par un réseau de population induit par des	



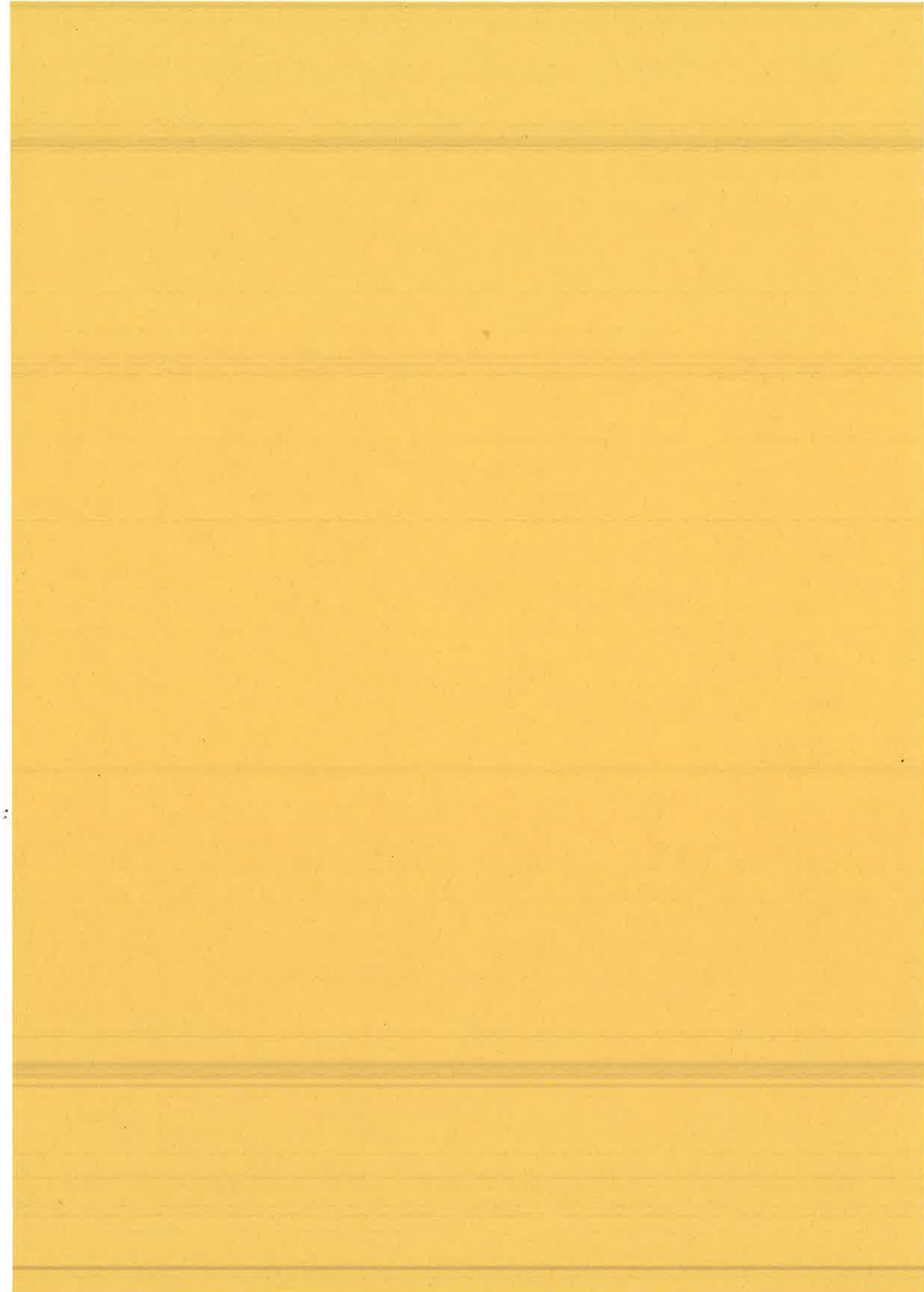
champs intenses	47
1)- Situation expérimentale	47
2)- Description du montage expérimental	50
a)- Sources lasers	50
b)- Ligne à retard variable	52
c)- Système atomique et four	53
d)- Configuration d'excitation	56
e)- Sélection angulaire et temporelle du signal	57
f)- Acquisition	58
3)- Résultats expérimentaux et discussion	61
III)- Interprétation	61
1)- Cadre de l'interprétation	61
2)- Evolution du système dans la représentation de Bloch	64
3)- Expression du signal dans la représentation de Bloch	67
4)- Expression du déphasage entre deux vecteurs de Bloch	70
5)- Cas où le champ 2 est faible	73
6)- Cas où le champ 2 est fort	75
 Chapitre IV - EFFETS DE PUISSANCE DANS UN SYSTEME A TROIS NIVEAUX EN V	 77
I)- Introduction	77
II)- Phénomène de résonance noire	78
III)- Expression des signaux détectés	82
1)- Expression des signaux en fonction des populations des états noir et brillant	82
a)- Excitation par des impulsions d'intensités très différentes	83
b)- Excitation par des impulsions d'intensités égales	84
2)- Calcul des moments d'ordre un des populations	85
3)- Variations du signal en fonction de $t_{12}$	91
a)- Expression de l'énergie du signal lorsque $T^{(2)} \ll T^{(1)}$	91
b)- Fonction de corrélation du signal avec une impulsion référence lorsque $T^{(2)} = T^{(1)}$	93
IV)- Résultats expérimentaux	93

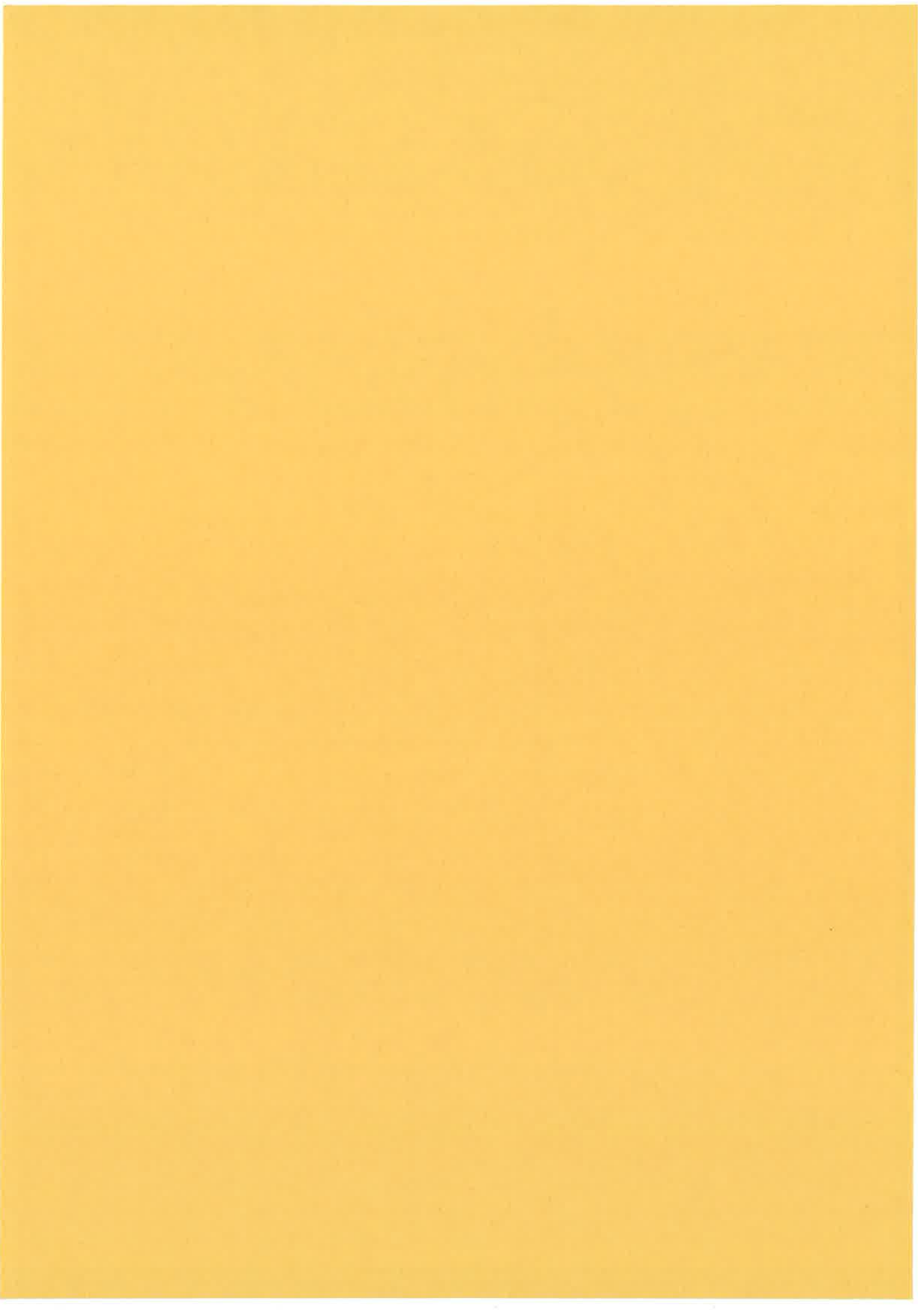




1)- Mesure de l'énergie	93
2)- Mesure de la cohérence Zeeman	96
a)- Corrélation d'amplitude	96
b)- Résultats expérimentaux	97
V)- Application à la sélection spatiale d'atomes	99
Chapitre V - ANALYSE TEMPORELLE DU SIGNAL : ECHANTILLONNAGE PAR CORRELATION D'AMPLITUDE	107
I)- Introduction	107
II)- Analyse résolue en temps de signaux transitoires, analyse par corrélation	110
III)- Effet Kerr	114
1)- Expression du signal de corrélation	114
2)- Détermination de la fonction réponse moyenne	115
a)- Evolution du système avant l'interaction avec l'impulsion sonde	115
b)- Action d'une impulsion sonde courte cohérente	117
c)- Profil temporel du champ émis après action du champ sonde, fonction réponse moyenne	120
IV)- Résultats expérimentaux	122
Conclusion	125
Appendice 1 - CORRECTION AU SIGNAL DE CORRELATION D'AMP- -LITUDE : MESURE DE LA COHERENCE ZEEMAN	129
Appendice 2 - CORRECTION AU SIGNAL DE CORRELATION D'AMP- -LITUDE : EFFET KERR	139
Références	153
Article - OBSERVATION OF OPI - PULSE FORMATION WITH INCOHERENT LIGHT	159







## INTRODUCTION

Durant ces quinze dernières années, de nombreux travaux ont été consacrés à l'étude de l'interaction d'un système atomique avec une source de bruit radiative intense. La plupart de ces études ont été consacrées au cas d'un système excité par un seul champ fluctuant [1-10]. Dans cette excitation deux paramètres interviennent pour caractériser l'interaction: le temps de cohérence  $\tau_c$ , caractéristique des fluctuations du champ et qui s'identifie à l'inverse de la largeur spectrale, et la fréquence de Rabi  $\chi$  qui caractérise la force du champ. Lorsque le produit  $\chi \tau_c$  est plus petit que 1 les grandeurs atomiques dépendent uniquement des moments statistiques d'ordre deux du champ. Lorsque ce produit est plus grand que 1, les grandeurs atomiques dépendent de moments d'ordre plus élevé. Ce dernier cas est propice à l'étude de la réponse atomique en fonction de la statistique du champ exciteur, ce qui constitue alors un moyen pour différencier diverses sources de bruit.

Les travaux réalisés dans ce dernier cas ont porté sur l'étude de l'effet Stark dynamique [1, 2], l'analyse des signaux de fluorescence à résonance [2-6] et d'ionisation multiphotonique [7-10]. La distribution spectrale de la fluorescence [2,3], le spectre de puissance des fluctuations d'intensité du champ émis, la population des niveaux excités ainsi que leur variance ont été calculés pour différents modèles de champs [4,5] et comparés récemment à l'expérience [6]. Tous les signaux obtenus dans ces études en présence d'un seul champ fluctuant font intervenir des moments statistiques à un seul atome (tel par exemple la valeur moyenne de la population du niveau excité). De plus ces signaux ont été analysés dans le domaine spectral.

Parallèlement à ces études, s'est développée depuis quelques années l'étude d'une situation nouvelle où l'excitation stochastique est réalisée par deux champs identiques [11,12], décalés dans le temps de  $t_{12}$  [13-21]. L'excitation ainsi produite est caractérisée par une forte corrélation entre deux valeurs du champ distantes d'un intervalle  $t_{12}$ . Les études réalisées, limitées au cas où le produit  $\chi \tau_c$  est plus petit que 1 pour les deux champs formant la séquence excitatrice, ont porté sur l'analyse temporelle des signaux transitoires cohérents émis par le système. Ces signaux se différencient des signaux de fluorescence à résonance et d'ionisation multiphotonique par la nature des quantités atomiques mises en jeu. En effet les signaux transitoires cohérents résultent de l'interférence cohérente des champs élémentaires émis par tous les atomes présents dans l'échantillon. L'intensité du signal fait intervenir la moyenne du produit des dipôles atomiques pris en deux points différents de cet échantillon. Ce sont des moments statistiques à deux atomes. Le cas où un seul des deux champs excitateurs est intense a été étudié expérimentalement et théoriquement au sein du groupe d'"échos de photons" du laboratoire Aimé Cotton. La mise en évidence d'un temps de mémoire anormalement court pour le système atomique soumis à cette excitation est un des résultats principaux de cette étude [15].

L'extension de ces études au cas où les deux impulsions sont intenses a permis de prédire théoriquement l'existence de structures encore plus étroites que  $\tau_c$ . Ce résultat est paradoxal, puisque  $\tau_c$  constitue le paramètre temporel le plus court du problème. Deux cas d'excitation ont été envisagés: celui d'un système à deux niveaux [18, 19] ou à trois niveaux en V [20].

Dans la partie centrale de ce mémoire nous présentons les expériences correspondantes à ces deux situations et nous confrontons les résultats expérimentaux à un modèle théorique. L'organisation de ce mémoire est la

suivante:

Le premier chapitre, rappelle quelques notions sur la formation de signaux transitoires dans la limite où les champs sont cohérents, faibles, de courte durée. Au fil de ce chapitre sont introduits les concepts de population de niveau, cohérence optique, cohérence Zeeman. On montre que le signal observé provient des seuls atomes qui ont interagi successivement avec les deux premières impulsions excitatrices. Ce signal résulte de la diffraction d'une impulsion sonde sur le réseau inscrit dans l'échantillon par les deux premières.

Le second chapitre introduit les champs excitateurs stochastiques. On calcule les différentes quantités auxquelles on peut avoir accès selon que l'on mesure l'énergie du signal émis ou que l'on effectue une corrélation d'amplitude entre les faisceaux sonde et signal.

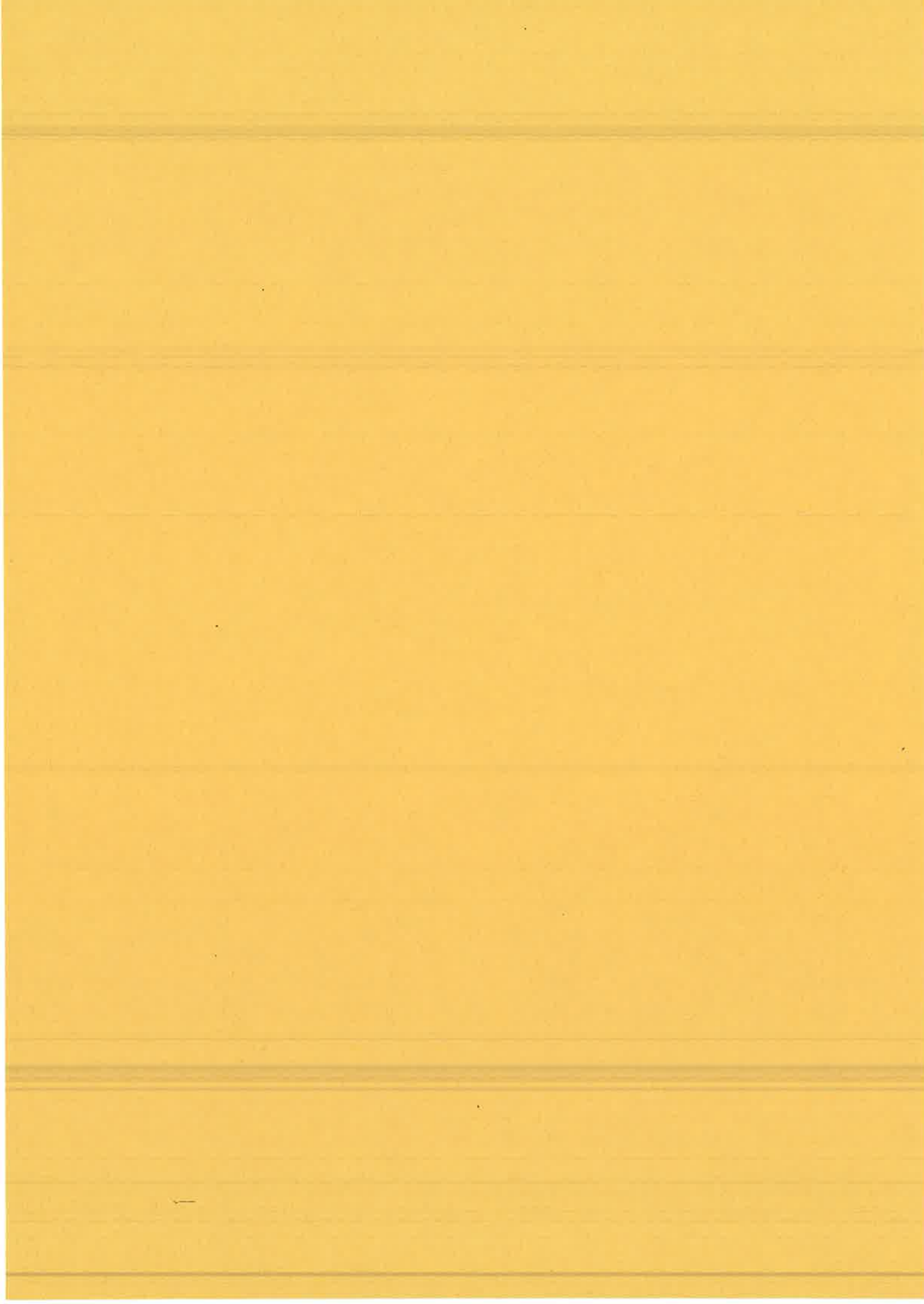
Le chapitre III aborde les effets de puissance dans un système à deux niveaux. On détecte l'énergie du signal émis en fonction du décalage  $t_{12}$ . On décrit le dispositif expérimental et on donne une interprétation physique des structures observées.

Le chapitre IV est consacré aux effets de puissance dans un système en V. Des structures temporelles (en fonction de  $t_{12}$ ) plus courtes que le temps de cohérence sont observées dans le profil de l'énergie du signal et dans celui de l'amplitude du champ. L'interprétation des résultats en terme de résonance noire est donnée. Nous montrons comment ces résultats peuvent être exploités pour effectuer une détection spatiale d'atomes à haute résolution.

Dans le chapitre V le système est sondé pendant qu'il est soumis à un champ intense et ce dans une configuration d'excitation Kerr. L'analyse du signal émis par la technique de corrélation d'amplitude nous permet d'accéder à la fonction réponse du système soumis au champ intense. Celle ci est

proportionnelle au signal que l'on aurait obtenu en remplaçant l'impulsion sonde par une impulsion dont la durée serait égale au temps de corrélation  $\tau_c$  (beaucoup plus court que la durée de l'impulsion). Enfin, par la même technique, nous analysons la déformation d'une impulsion stochastique se propageant dans un milieu optiquement épais.







*CHAPITRE I*

**EXCITATION RESONNANTE DE TRANSITOIRES OPTIQUES COHERENTS  
DANS UNE VAPEUR ATOMIQUE**

**I- INTRODUCTION**

Nous nous intéressons dans ce chapitre à la formation de signaux transitoires dans des vapeurs atomiques. Le système atomique est excité par une séquence de deux impulsions, dites de pompe, éventuellement décalées dans le temps. Nous montrons comment il est possible d'induire et d'isoler un signal provenant des seuls atomes qui ont interagi avec les deux impulsions. Le principe est le suivant : on introduit une petite séparation angulaire entre les vecteurs d'onde de ces deux impulsions, un réseau de Bragg spatial s'inscrit alors dans les quantités atomiques. Le signal est obtenu par diffraction sur ce réseau d'une troisième impulsion dite de sonde (diffusion Rayleigh). Pour une direction de propagation convenable de l'impulsion sonde, le signal est diffusé dans une direction différente de celles des impulsions excitatrices, ce qui facilite sa détection. Dans un souci de simplification, nous supposons que toutes les impulsions qui interviennent dans ce processus sont de faible intensité et cohérentes. L'interaction est résonnante et les temps de relaxation atomique sont supposés beaucoup plus grands que tous les temps caractéristiques des séquences d'excitation envisagées. En particulier la relation suivante est vérifiée :

$$\Delta_D^{-1} \gg \tau_L$$

I-1

où  $\tau_L$  est la durée d'une impulsion et  $\Delta_D$  la largeur Doppler de la transition excitée.

Avant d'aborder la formation du signal diffracté par un réseau de Bragg inscrit dans l'échantillon, nous examinons dans le paragraphe II la formation du signal cohérent le plus élémentaire, celui que l'on obtient par diffusion Rayleigh d'une impulsion lumineuse courte dans une vapeur atomique en équilibre thermodynamique. Nous déterminons les caractéristiques du signal émis, notamment sa directivité et son déroulement temporel.

Dans le reste du chapitre, on illustre deux exemples d'inscription d'un réseau de Bragg. Le paragraphe III est consacré au cas où toutes les impulsions ont des polarisations linéaires et parallèles entre elles. Elles excitent alors la même transition (système à deux niveaux). Le réseau de Bragg s'inscrit dans les populations des niveaux atomiques. Dans le paragraphe IV, les polarisations des impulsions de pompe sont croisées et excitent une transition entre niveaux de moments angulaires  $J=0$  et  $J=1$ . Le réseau de Bragg s'inscrit alors dans la cohérence Zeeman du niveau  $J=1$ . On étudie la diffraction par ce réseau d'une impulsion sonde de polarisation parallèle à l'une ou l'autre des impulsions de pompe.

## II- DIFFUSION RAYLEIGH PAR UNE VAPEUR ATOMIQUE EN EQUILIBRE THERMODYNAMIQUE

Soit un échantillon gazeux constitué d'atomes à deux niveaux, notés  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ , couplés par une transition dipolaire électrique. L'échantillon est soumis à une impulsion laser polarisée linéairement suivant un vecteur

unitaire  $\vec{e}$ . Le champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r},t) = \vec{e} \frac{\mathcal{E}(t)}{2} e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} + C.C. \quad I-2$$

où  $\mathcal{E}(t)$  est une enveloppe de durée  $\tau_L$ ,  $\vec{k}$  le vecteur d'onde et  $\omega$  la fréquence de l'onde qu'on supposera résonnante avec la transition  $|0\rangle - |1\rangle$ . Nous allons déterminer dans ce qui suit le champ diffusé par l'échantillon.

### 1)- Equations d'évolution

L'évolution d'un atome de vitesse  $\vec{v}$ , situé en  $\vec{r}$  à l'instant  $t$  est décrit par l'équation [21] :

$$i\hbar (\dot{\rho} + \vec{v} \cdot \nabla \rho) = [H, \rho] \quad I-3$$

$\rho(\vec{r}, \vec{v}, t)$  est la matrice densité.

$H$  est l'Hamiltonien total du système :  $H = H_0 + H_{int}$ .

$H_0$  est l'Hamiltonien du système en l'absence de champ; ses états propres sont  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ .

L'échantillon est optiquement mince de sorte que le champ perçu par les atomes se confond avec le champ appliqué [22].

$H_{int}$  est l'Hamiltonien d'interaction avec le champ et s'écrit :

$$H_{int} = - \vec{\mu} \cdot \vec{E} \quad I-4$$

Les éléments de matrice non nuls de  $H_{int}$  sont :

$$\langle 0 | H_{\text{int}} | 1 \rangle = \langle 1 | H_{\text{int}} | 0 \rangle = - \mu_{01} E(\vec{r}, t) \quad \text{I-5}$$

avec  $\mu_{01} = \langle 0 | \vec{\mu} \cdot \vec{e} | 1 \rangle$  où  $\vec{\mu}$  est le moment dipolaire de la transition.

En introduisant alors la notation :

$$\tilde{\rho}_{ij} = \langle i | \rho | j \rangle \quad \text{I-6}$$

l'équation I-3 s'écrit sous la forme d'un système d'équations différentielles

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{\rho}}_{00} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \tilde{\rho}_{00} &= \frac{i}{\hbar} \mu_{01} \left[ E(\vec{r}, t) \tilde{\rho}_{10} - E^*(\vec{r}, t) \tilde{\rho}_{01} \right] \\ \dot{\tilde{\rho}}_{11} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \tilde{\rho}_{11} &= - \frac{i}{\hbar} \mu_{01} \left[ E(\vec{r}, t) \tilde{\rho}_{10} - E^*(\vec{r}, t) \tilde{\rho}_{01} \right] \\ \dot{\tilde{\rho}}_{01} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \tilde{\rho}_{01} &= \frac{i}{\hbar} \mu_{01} E(\vec{r}, t) \left[ \tilde{\rho}_{11} - \tilde{\rho}_{00} \right] + i \omega \tilde{\rho}_{01} \end{aligned} \quad \text{I-7}$$

La conservation du nombre d'atomes impose en plus la condition :

$$\tilde{\rho}_{00} + \tilde{\rho}_{11} = N W(\vec{v}) \quad \text{I-8}$$

où  $N$  est la densité volumique des atomes et  $W(\vec{v})$  la fonction de distribution des vitesses à l'équilibre thermodynamique. Le système d'équations différentielles I-7 peut être simplifié en tenant compte du caractère résonnant de l'interaction. En écrivant  $\tilde{\rho}_{01}$  sous la forme  $\tilde{\rho}_{01} = \rho_{01} e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}$ , et en ne retenant que les termes lentement variables (approximation de l'onde tournante [23] ), on obtient le système différentiel:

$$\dot{\tilde{n}}_{01} = i (\chi^* \rho_{01} - \chi \rho_{10}) \quad \text{I-9}$$

$$\dot{\tilde{\rho}}_{01} = i \frac{\chi}{2} \tilde{n}_{01} + i \Delta \rho_{01}$$

où  $\tilde{n}_{01} = (\tilde{\rho}_{11} - \tilde{\rho}_{00})$  ;  $\chi(t) = \frac{\mu_{01}}{\hbar} \mathcal{E}(t)$  ;  $\Delta = \vec{k} \cdot \vec{v}$  est le décalage Doppler longitudinal. La largeur Doppler de l'échantillon s'identifie à  $\Delta_D = k \bar{v}$  où  $\bar{v}$  est la vitesse quadratique moyenne des atomes.

## 2)- Champ rayonné

L'impulsion lumineuse induit dans le milieu une densité de polarisation oscillante :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \text{Trace}(\vec{\mu} \rho) = \int d\vec{v} \tilde{\rho}_{01}(\vec{r}, \vec{v}, t) \mu_{01} \vec{e} + \text{C.C.} \quad \text{I-10}$$

Cette polarisation induit un champ rayonné  $\vec{E}_R(\vec{r}, t)$  qui vérifie l'équation d'onde [24] :

$$(\Delta_{\perp} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}) \vec{E}_R - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}_R}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad \text{I-11}$$

avec:  $y = \vec{k} \cdot \vec{r} / |\vec{k}|$  .

Le terme  $\Delta_{\perp}$  rend compte des effets de diffraction qui pour un échantillon de dimension transverse suffisamment grande sont négligeables (plus précisément quand  $d \gg \lambda$ ,  $\sqrt{\lambda L}$  ;  $d$  et  $L$  sont respectivement la dimension transverse et longitudinale de l'échantillon [25]). L'équation d'onde peut être résolue en tenant compte de l'approximation de l'enveloppe lentement variable [26]. On

obtient à la sortie de l'échantillon de longueur L :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{-i}{\epsilon_0} \vec{e} \mu_{01} L \overline{\rho}_{01}(\vec{r}, \vec{v}, t) + C.C. \quad I-12$$

le signe  $\overline{\phantom{x}}$  désigne la moyenne sur toutes les classes de vitesses.

L'intensité de l'impulsion est supposée faible au sens où on peut effectuer un développement perturbatif des quantités atomiques du système I-9. On obtient ainsi au premier ordre :

$$\rho_{01}^{(1)}(t) = i \int_{-\infty}^t dt' \frac{\chi(t')}{2} n_{01}^{(0)} e^{i \Delta (t-t')} \quad I-13$$

Comme le système est à l'équilibre avant l'excitation, on aura :

$$n_{01}^{(0)}(\Delta) = -N W(\Delta) \quad I-14$$

avec 
$$W(\Delta) = \int dv_{\perp} W(\vec{v}) ; \vec{v} = \vec{v}_{\perp} + \frac{\vec{k} \cdot \vec{v}}{|\vec{k}|} \quad I-15$$

en tenant compte de I-1, I-12 et I-13, on obtient pour le champ rayonné :

$$\vec{E}_e(\vec{r}, t) \propto \vec{e} \hat{W}(t-t_s) e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} + C.C. \quad I-16$$

où  $\hat{W}(t-t_s) = \int d\Delta W(\Delta) e^{i\Delta(t-t_s)}$  est la transformée de Fourier inverse de la distribution des fréquences  $W(\Delta)$  et où  $t_s$  est l'instant d'excitation des atomes. Bien qu'un dipôle rayonne dans toutes les directions de l'espace, le signal de diffusion Rayleigh cohérent est émis dans la même direction que le



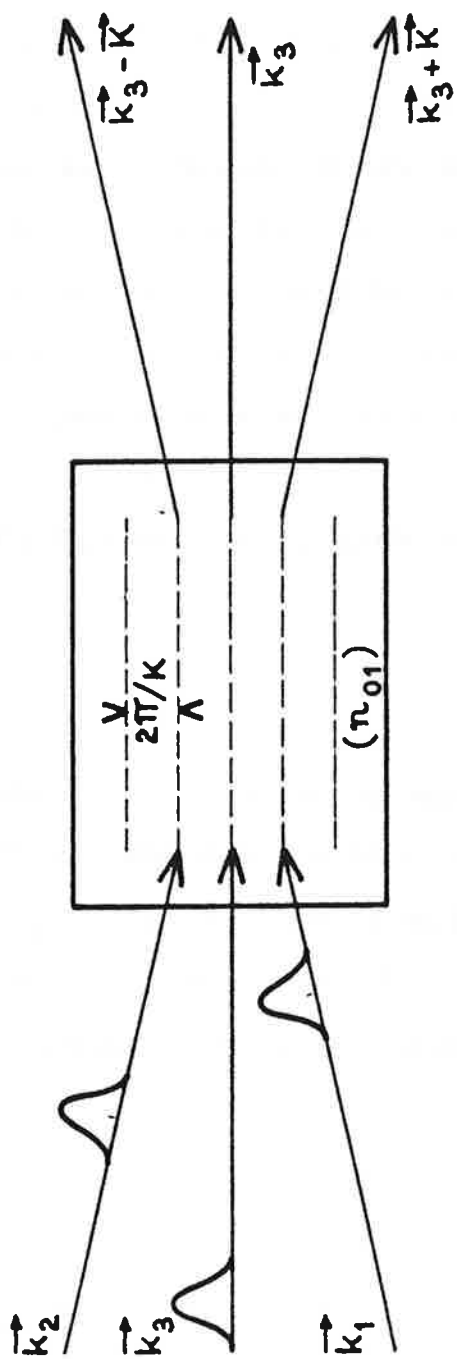


FIGURE I-1: Diffraction d'une impulsion ( $\vec{k}_3$ ) par un réseau de population de pas  $2\pi/K$  dans les ordres  $+1$  ( $\vec{k}_3 - \vec{K}$ ) et  $-1$  ( $\vec{k}_3 + \vec{K}$ )

champ qui lui a donné naissance. Partout ailleurs, l'interférence entre les rayonnements émis par les différents dipôles est destructive. Cette directivité (quand les dimensions transverses sont suffisamment grandes) est la signature du caractère cohérent de l'émission [25]. La dépendance temporelle du signal est contenue dans le terme  $\hat{W}$  qui s'annule dès que  $(t-t_s)$  est plus grand que  $\Delta_D^{-1}$ . L'interprétation est la suivante : les dipôles, excités en phase par l'impulsion, évoluent ensuite librement. Au bout d'un temps  $\Delta_D^{-1}$  ces dipôles sont déphasés les uns par rapport aux autres à cause de l'effet Doppler. Les rayonnements émis par ces différents dipôles interfèrent alors de façon destructive, ce qui conduit à l'extinction du signal cohérent.

### III- DIFFRACTION PAR UN RESEAU SPATIAL DE POPULATION

#### 1)- Réseau de Bragg inscrit

Nous supposons que le milieu atomique est irradié par deux impulsions laser de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  non colinéaires mais tels que l'angle  $(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$  soit petit. Ces impulsions sont décalées dans le temps de  $t_{12}$ . Nous supposons pour simplifier qu'elles ont la même amplitude  $\mathcal{E}(t)$ . A l'extinction des deux impulsions la différence de population induite s'écrit [27] ( $\vec{K} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ ):

$$n_{01}(\vec{r}, \Delta, t_f) = \sum_{p=-1}^{p=1} n_{01}^{(p)}(\Delta, t_f) e^{i p \vec{K} \cdot \vec{r}}, \quad p: \text{entier} \quad \text{I-17}$$

avec :

$$n_{01}^{(0)}(\Delta, t_f) = - N W(\Delta) \left[ 1 - \left( \frac{\mu_{01}}{\hbar} \right)^2 \left( \int \mathcal{E}(t) dt \right)^2 \right] \quad \text{I-18}$$

$$n_{01}^{\pm 1}(\Delta, t_f) = N W(\Delta) \left( \frac{\mu_{01}}{\hbar} \right)^2 \left( \int \mathcal{E}(t) dt \right)^2 e^{\pm i \Delta t_{12} / 2} \quad \text{I-19}$$

C'est donc un réseau de Bragg (Fig. I-1) qui s'inscrit dans la différence de population des niveaux atomiques. Ce réseau s'inscrit même quand les impulsions ne se chevauchent plus dans le temps (cas pour lequel la figure d'interférence des deux impulsions n'existe plus). Ceci résulte de la conservation de la mémoire de la phase du champ excitateur par les atomes à travers les cohérences optiques [27]. Le réseau ainsi gravé reflète l'interaction du système atomique avec chacune des deux impulsions excitatrices dirigées suivant  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ .

## 2)- Diffraction d'une impulsion sonde

A la fin de l'excitation, le réseau évolue sous l'action du mouvement de diffusion des atomes qui tend à effacer le réseau créé. Cet effet est négligeable tant qu'on observe le système pendant un temps petit devant le temps  $[\Delta_D(\vec{k}_1, \vec{k}_2)]^{-1}$  que met un atome à franchir un pas du réseau. A l'instant  $t_s = (t_f + \tau)$  tel que  $\tau \ll [\Delta_D(\vec{k}_1, \vec{k}_2)]^{-1}$ , on réalise la diffusion Rayleigh (Fig I-1) d'une troisième impulsion dont le champ s'écrit :

$$\vec{E}_3(\vec{r}, t) = \vec{e} \frac{\mathcal{E}_3(t)}{2} e^{i(\omega t - \vec{k}_3 \cdot \vec{r})} + \text{C.C.} \quad \text{I-20}$$

avec

$$\vec{k}_3 \cdot \vec{v} \approx \vec{k}_1 \cdot \vec{v} \approx \vec{k}_2 \cdot \vec{v} \approx \Delta \quad \text{I-21}$$

La contribution du réseau de Bragg à la cohérence induite par l'impulsion sonde est obtenue en remplaçant dans l'équation I-13, la différence de

population à l'équilibre  $n_{01}$  par l'expression I-17 :

$$\tilde{\rho}_{01}^{(3)} \propto \sum_{p=-1}^{p=1} n_{01}^{(p)}(\Delta, t_f) e^{i[\Delta(t-t_s) + \omega t]} e^{ip\vec{K} \cdot \vec{r}} \quad \text{I-22}$$

Cette cohérence est la somme de trois contributions; la première décrit la diffusion Rayleigh cohérente dans la direction  $\vec{k}_3$ . Les deux autres donnent naissance à des polarisations ayant une dépendance spatiale en  $e^{i(\vec{k}_3 \pm \vec{K}) \cdot \vec{r}}$ . La résolution de l'équation d'onde montre alors que les champs émis par les dipôles ne s'additionnent de façon constructive que si la condition d'accord de phase est réalisée [28]. Pour un échantillon de longueur infinie, cette condition s'écrit :

$$k_3 = |\vec{k}_3 \pm \vec{K}| \quad \text{I-23}$$

Cette équation coïncide avec la formule de Bragg [28] dans le premier ordre. Les dipôles émettent alors en phase le rayonnement dans la direction  $(\vec{k}_3 \pm \vec{K})$  (Fig.I-1). En appliquant l'équation de diffraction par un réseau aux vecteurs d'onde sélectionnés par cette équation d'accord de phase, on constate que les ondes correspondantes sont réfléchies sur les plans équiphases du réseau.

Pour un échantillon de longueur finie  $L$ , la condition est moins sévère. Il suffit que le déphasage  $\Delta\Phi$  entre les champs émis par les différents dipôles de l'échantillon soit faible devant  $2\pi$ . Ce déphasage  $\Delta\Phi$  est au plus égal à :

$$\Delta\Phi \approx \left| |\vec{k}_3 \pm \vec{K}| L - |k_3| L \right| \quad \text{I-24}$$

Quand la condition  $\Delta\Phi \ll 2\pi$  est réalisée, le champ émis dans la direction

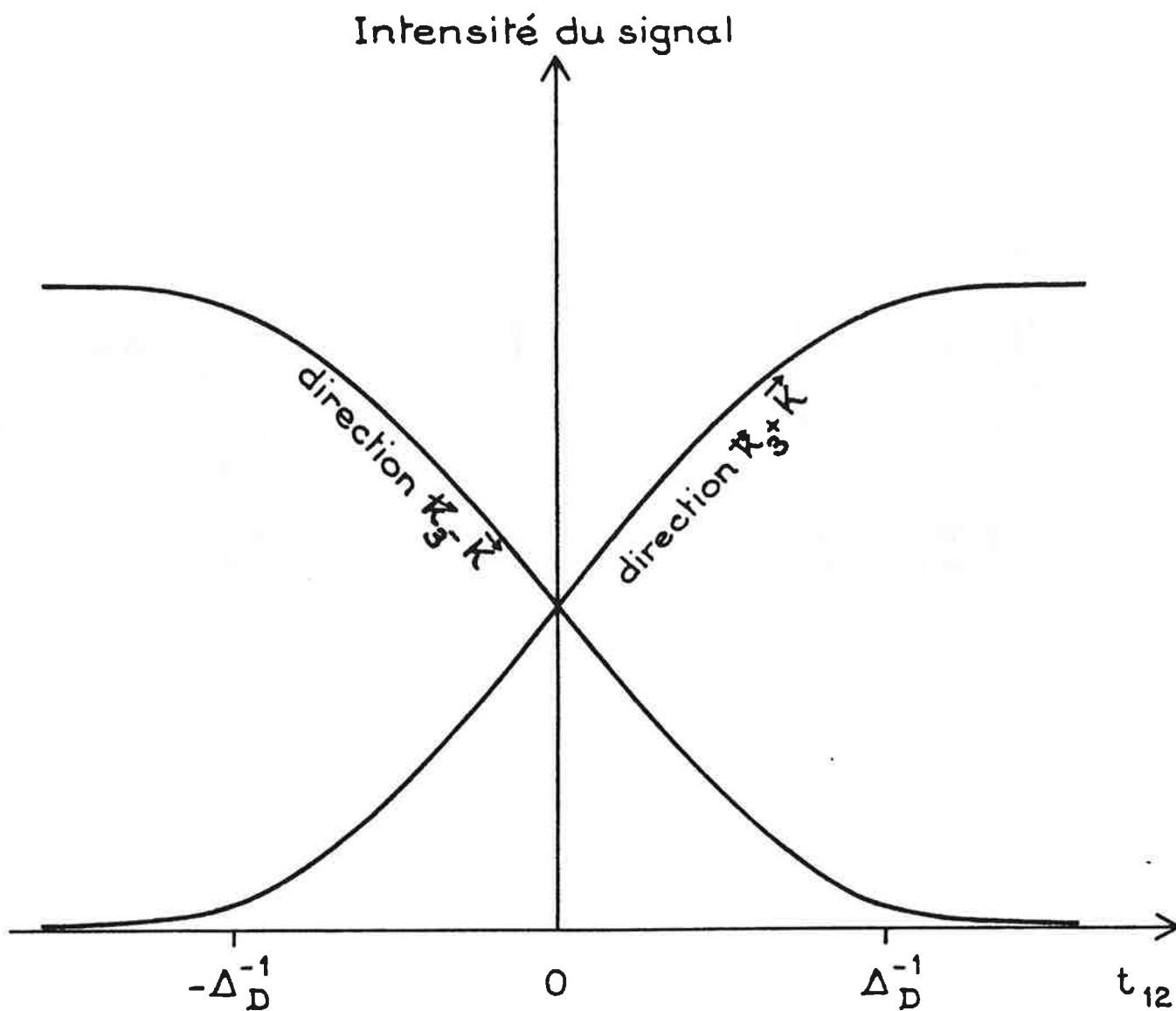
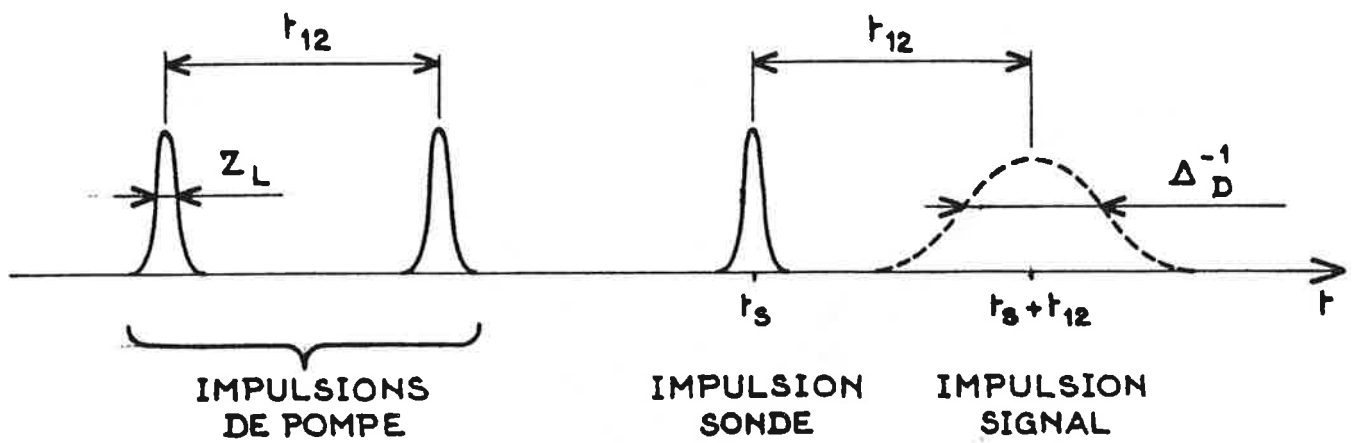


FIGURE I-2: Intensité du signal émis en régime de champ faible, en fonction du décalage temporel entre les deux premières impulsions.  $\Delta_D$  est la largeur Doppler de l'échantillon.



**FIGURE I- 3:** Déroulement temporel du processus d'excitation. Les impulsions sont courtes ( $\tau_L \ll \Delta_D^{-1}$ ) et l'ordre d'arrivée des impulsions est tel que  $t_{12} > \Delta_D^{-1}$ . L'émission se fait alors dans la direction  $\vec{k}_3 + \vec{k}$ .

$(\vec{k}_3 \pm \vec{K})$  (Fig.I-1) s'écrit :

$$\vec{E}_e^{\pm}(\vec{r},t) \propto \vec{e} \int d\Delta n_{01}^{(\pm 1)}(\Delta, t_s) e^{i\Delta(t-t_s)} e^{i\omega t} e^{-i(\vec{k}_3 \mp \vec{K}) \cdot \vec{r}} \quad \text{I-25}$$

Ce champ est proportionnel à la transformée de Fourier de la composante  $n_{01}^{(\pm 1)}$  du réseau de Bragg inscrit : c'est la quantité atomique à laquelle cette approche expérimentale donne accès.

### 3)- Déroulement temporel du signal

Le signal émis peut se réécrire d'après I-17, I-19 comme :

$$\vec{E}_e^{\pm}(\vec{r},t) \propto \vec{e} \hat{W}(t-t_s \pm t_{12}) e^{-i(\vec{k}_3 \mp \vec{K}) \cdot \vec{r}} e^{i\omega t} Y(t-t_s) + \text{C.C.} \quad \text{I-26}$$

où  $Y(t-t_s)$  est la fonction de Heavyside qui tient compte de la relation de causalité entre la sonde et le signal. La dépendance temporelle du signal se trouve contenue dans la fonction  $\hat{W}$ . Cette fonction atteint son maximum en  $t = t_s \mp t_{12}$  pour un signal émis dans la direction  $\vec{k}_3 \mp \vec{K}$  et s'annule après un temps de l'ordre de  $\Delta_D^{-1}$  de part et d'autre du maximum. La relation de causalité  $t > t_s$  entre l'impulsion sonde et le signal qu'elle induit, impose que dans la direction  $(\vec{k}_3 + \vec{K})$  (resp.  $(\vec{k}_3 - \vec{K})$ ), l'émission se produit seulement pour  $t_{12} > \Delta_D^{-1}$  (resp.  $t_{12} < -\Delta_D^{-1}$ ) [Fig. I-2]. Le déroulement temporel, représenté dans la figure I-3 montre que le signal peut être émis bien après l'extinction de l'impulsion sonde (pour  $|t_{12}| > \Delta_D^{-1}$ ), cette propriété est à l'origine du nom d'"écho de photon" (stimulé) donné au signal [29, 30, 31]. Comme le processus de diffraction sur un réseau met en jeu quatre impulsions, il est désigné par le nom de mélange à quatre ondes.

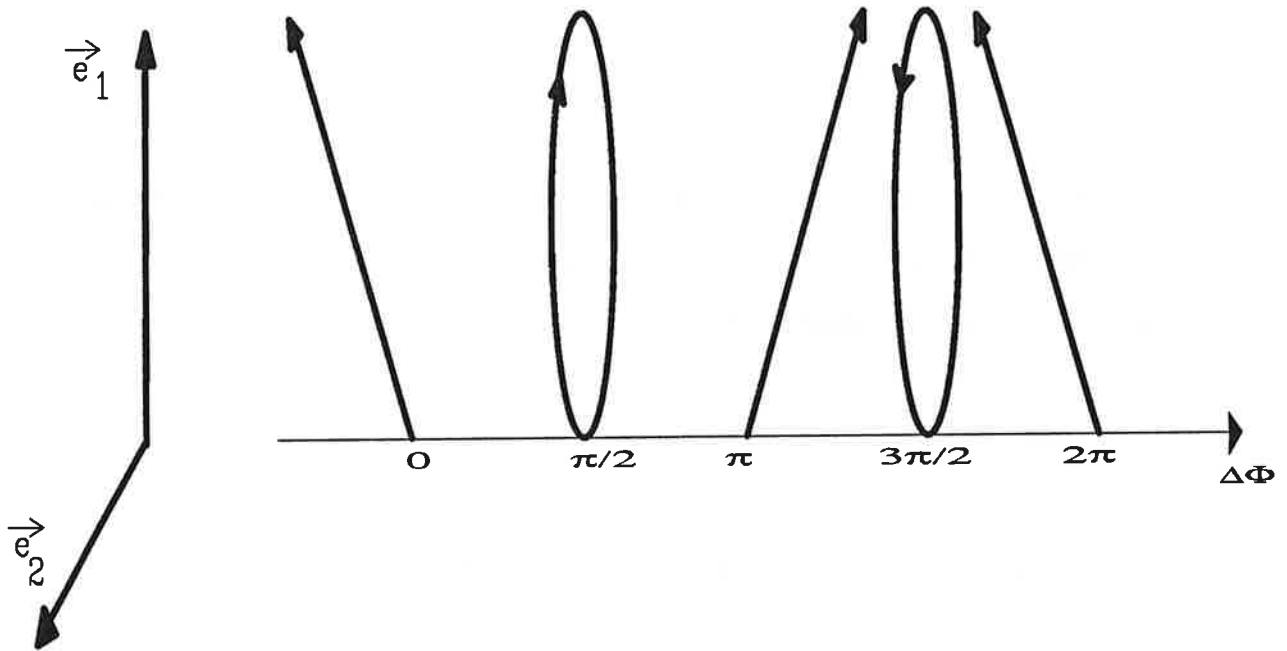


FIGURE I- 4: Variation spatiale de l'état de polarisation d'un champ, somme de deux champs de vecteurs de polarisation  $\vec{e}_1$  et  $\vec{e}_2$  orthogonales et de vecteurs d'ondes  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  non colinéaires. On a  $\Delta\phi = (\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}$ . La polarisation est linéaire pour  $\Delta\phi = 0, \Pi, 2\Pi$  et elliptique ailleurs (elliptique gauche pour  $\Delta\phi = \Pi/2$ , elliptique droite pour  $\Delta\phi = 3\Pi/2$ ).



#### IV- DIFFRACTION PAR UN RESEAU SPATIAL DE COHERENCE

##### ZEEMAN

Nous avons considéré jusqu'à présent le cas d'un système à deux niveaux non dégénérés. Dans ce paragraphe, nous étudions l'excitation d'une transition entre niveaux de moments angulaire  $J=0$  et  $J=1$ . On considère la même séquence temporelle qu'au paragraphe III. Les impulsions ont des polarisations orthogonales. La superposition des deux premières impulsions donne un champ total qui s'écrit :

$$\vec{E}_T = \vec{e}_1 \frac{\epsilon_1(t)}{2} e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + \vec{e}_2 \frac{\epsilon_1(t-t_{12})}{2} e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} + C.C. \quad I-27$$

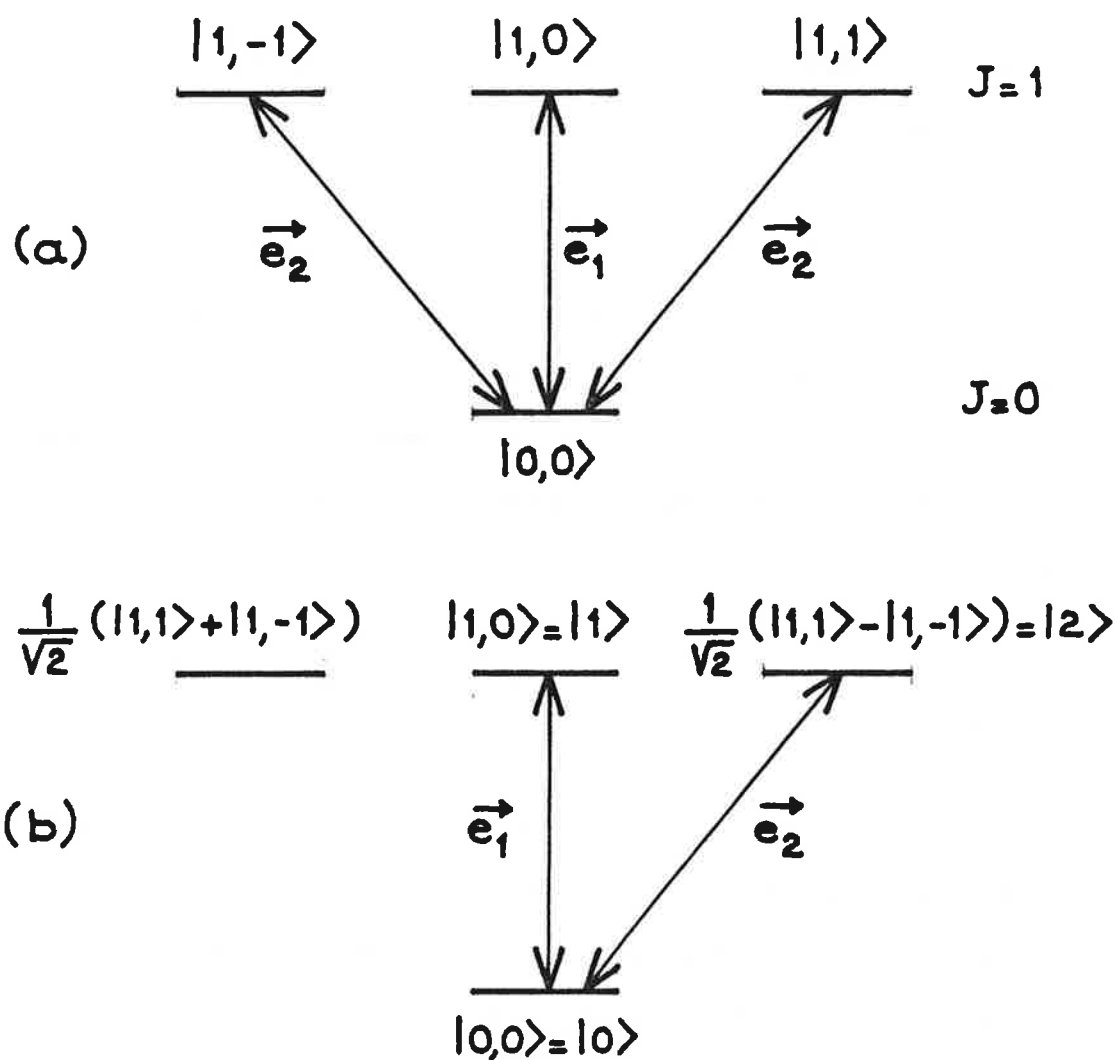
où  $\vec{e}_1$  et  $\vec{e}_2$  sont deux vecteurs unitaires avec  $\vec{e}_1 \cdot \vec{e}_2 = 0$ . L'intensité lumineuse est uniforme dans l'échantillon même si les impulsions sont synchrones ( $t_{12} = 0$ ). Intéressons nous à la polarisation du champ global quand  $t_{12} = 0$ . La différence de phase  $\Delta\phi$  entre les deux composantes du champ est :

$$\Delta\phi = (\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r} \quad I-28$$

L'état de polarisation du champ varie spatialement dans la direction  $\vec{k}_2 - \vec{k}_1$  (Fig. I-4). On réalise ainsi non plus une modulation de l'amplitude du champ mais de la polarisation [32].

##### 1)- Réseau de Bragg inscrit

L'évolution du système atomique est toujours décrite par l'équation I-2. L'Hamiltonien  $H$  est la somme du Hamiltonien  $H_0$  et du Hamiltonien d'interaction



**FIGURE I- 5:** (a)- Transitions entre niveaux  $J=0$  et  $J=1$  excités par deux champs de polarisations  $\vec{e}_1$  et  $\vec{e}_2$  tel que  $\vec{e}_1 \perp \vec{e}_2$ .  
 (b)- Système et transitions équivalents après changement de base.

$H_{\text{int}} = - \vec{\mu} \cdot \vec{E}_T$ . Dans un but de simplification, on choisit le système d'axes formant le trièdre direct tel que  $\vec{e}_2$  soit parallèle à l'axe  $\vec{OX}$ , et  $\vec{e}_1$  parallèle à l'axe de quantification  $\vec{OZ}$ . L'impulsion de polarisation  $\vec{e}_1$  excite alors la seule transition  $|0,0\rangle \rightarrow |1,0\rangle$  et l'impulsion de polarisation  $\vec{e}_2$  les transitions  $|0,0\rangle \rightarrow |1,1\rangle$  et  $|0,0\rangle \rightarrow |1,-1\rangle$  (Fig. I-5-a). Les notations  $|0\rangle$ ,  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$ ,  $|3\rangle$  désignent respectivement les états  $|0,0\rangle$ ,  $|1,0\rangle$ ,  $(|1,1\rangle - |1,-1\rangle)/\sqrt{2}$ ,  $(|1,1\rangle + |1,-1\rangle)/\sqrt{2}$ . Dans une rotation de  $\pi/2$  du système qui amène  $\vec{e}_1$  en  $\vec{e}_2$ , l'état  $|1\rangle$  se transforme en état  $|2\rangle$ . Il s'ensuit que seul l'état  $|2\rangle$  est connecté à l'état  $|0\rangle$  par l'impulsion de polarisation  $\vec{e}_2$  et que les forces de transition de  $|0\rangle$  vers  $|1\rangle$  et de  $|0\rangle$  vers  $|2\rangle$  sont identiques, d'où l'égalité:

$$\langle 1 | \vec{\mu} \cdot \vec{e}_1 | 0 \rangle = \langle 0 | \vec{\mu} \cdot \vec{e}_1 | 1 \rangle = \langle 2 | \vec{\mu} \cdot \vec{e}_2 | 0 \rangle = \langle 0 | \vec{\mu} \cdot \vec{e}_2 | 2 \rangle = \mu_{01}$$

I-29

Le système est alors équivalent à un système à trois niveaux en V (Fig.I-5-b). Le caractère résonnant de l'interaction nous permet toujours d'utiliser l'approximation de l'onde tournante et de décrire l'évolution du système atomique par les équations suivantes :

$$i \dot{\rho}_{12} = - \frac{\chi_1^*}{2} \rho_{02} + \frac{\chi_2}{2} \rho_{10}$$

$$i \dot{\rho}_{02} = \frac{\chi_2}{2} n_{20} - \frac{\chi_1}{2} \rho_{12} - \Delta \rho_{02}$$

$$i \dot{\rho}_{10} = - \frac{\chi_1^*}{2} n_{10} + \Delta \rho_{10} + \frac{\chi_2^*}{2} \rho_{12} \quad \text{I-30}$$

$$i \dot{n}_{10} = - \left( \chi_1 \rho_{10} + \frac{\chi_2}{2} \rho_{20} \right) - \text{C.C.}$$

$$i \dot{n}_{20} = - \left( \chi_2 \rho_{20} + \frac{\chi_1}{2} \rho_{10} \right) - C.C.$$

avec :

$$\chi_1 = \frac{\mu_{01}}{\hbar} \mathcal{E}_1(t) \quad ; \quad \chi_2 = \frac{\mu_{01}}{\hbar} \mathcal{E}_2(t-t_{12})$$

$$n_{ij} = \tilde{\rho}_{ij} - \tilde{\rho}_{ii} \quad ; \quad \Delta = \vec{k}_1 \cdot \vec{v} \approx \vec{k}_2 \cdot \vec{v}$$

$$\rho_{12} = \tilde{\rho}_{12} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}} \quad ; \quad \vec{K} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$$

$$\tilde{\rho}_{01} = \rho_{01} e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \quad ; \quad \tilde{\rho}_{02} = \rho_{02} e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})}$$

Un développement perturbatif permet de résoudre ce système. A l'ordre le plus bas, les deux seules quantités qui font intervenir les deux impulsions sont  $\rho_{12}^{(2)}$  et  $\rho_{21}^{(2)}$ . Sachant que :

$$n_{10}^{(0)}(\Delta) = N W(\Delta) = n_{20}^{(0)}(\Delta) \quad \text{I-31}$$

On aura à la fin de l'excitation :

$$\rho_{12}^{(2)} \propto N W(\Delta) e^{-i\Delta t_{12}} e^{-i\vec{K} \cdot \vec{r}}$$

I-32

$$\rho_{21}^{(2)} \propto N W(\Delta) e^{i\Delta t_{12}} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}}$$

Nous constatons qu'il y a bien inscription d'un réseau de Bragg à deux composantes (en  $i\vec{K} \cdot \vec{r}$  et  $-i\vec{K} \cdot \vec{r}$ ) dans les cohérences Zeeman du système. Comme pour le réseau de population, grâce à la mémoire atomique, le réseau s'inscrit même si le décalage  $t_{12}$  est plus grand que les durées des impulsions et que la polarisation du champ ne soit ainsi plus modulée spatialement.

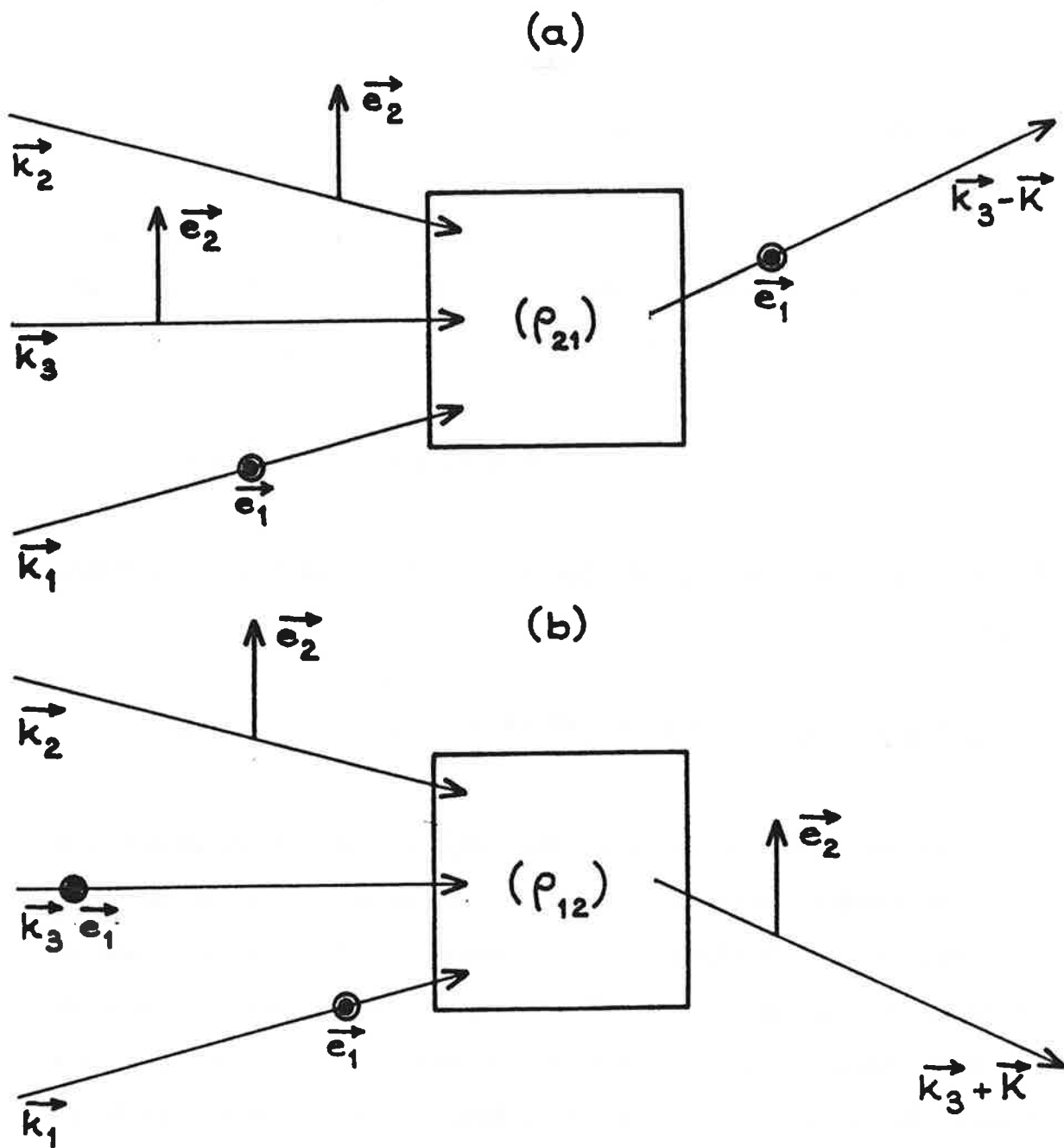


FIGURE I- 6: Diffraction de l'impulsion sonde par le réseau de cohérence Zeeman:

- (a): Polarisation de l'impulsion sonde parallèle à celle de l'impulsion 2 ( $\vec{e}_2$ ).
- (b): Polarisation de l'impulsion sonde parallèle à celle de l'impulsion 1 ( $\vec{e}_1$ ).

## 2)- Diffraction de l'onde sonde

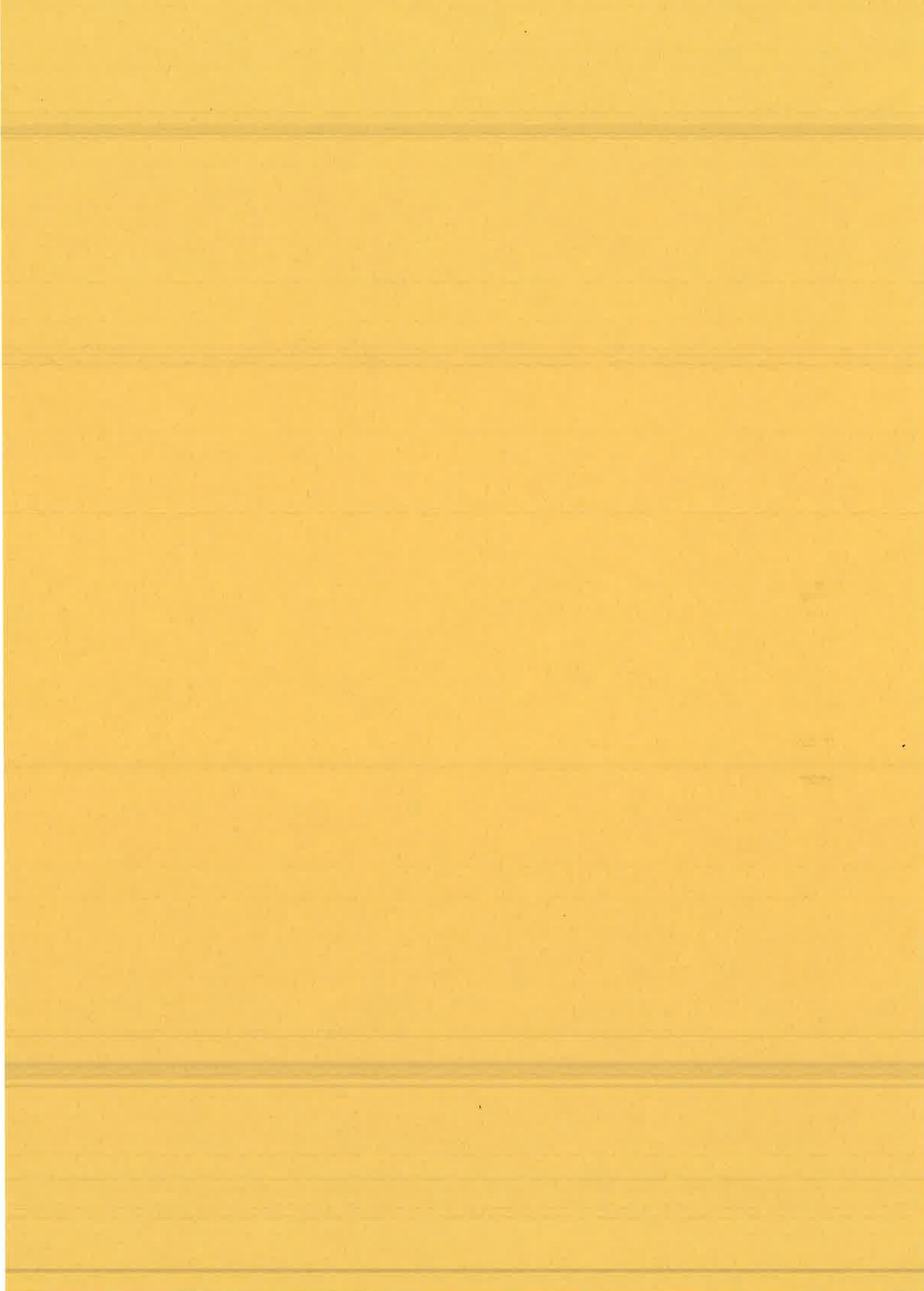
Deux cas sont à considérer selon la direction de polarisation de l'impulsion sonde. Supposons qu'elle est parallèle à l'impulsion 1, son champ s'écrit :

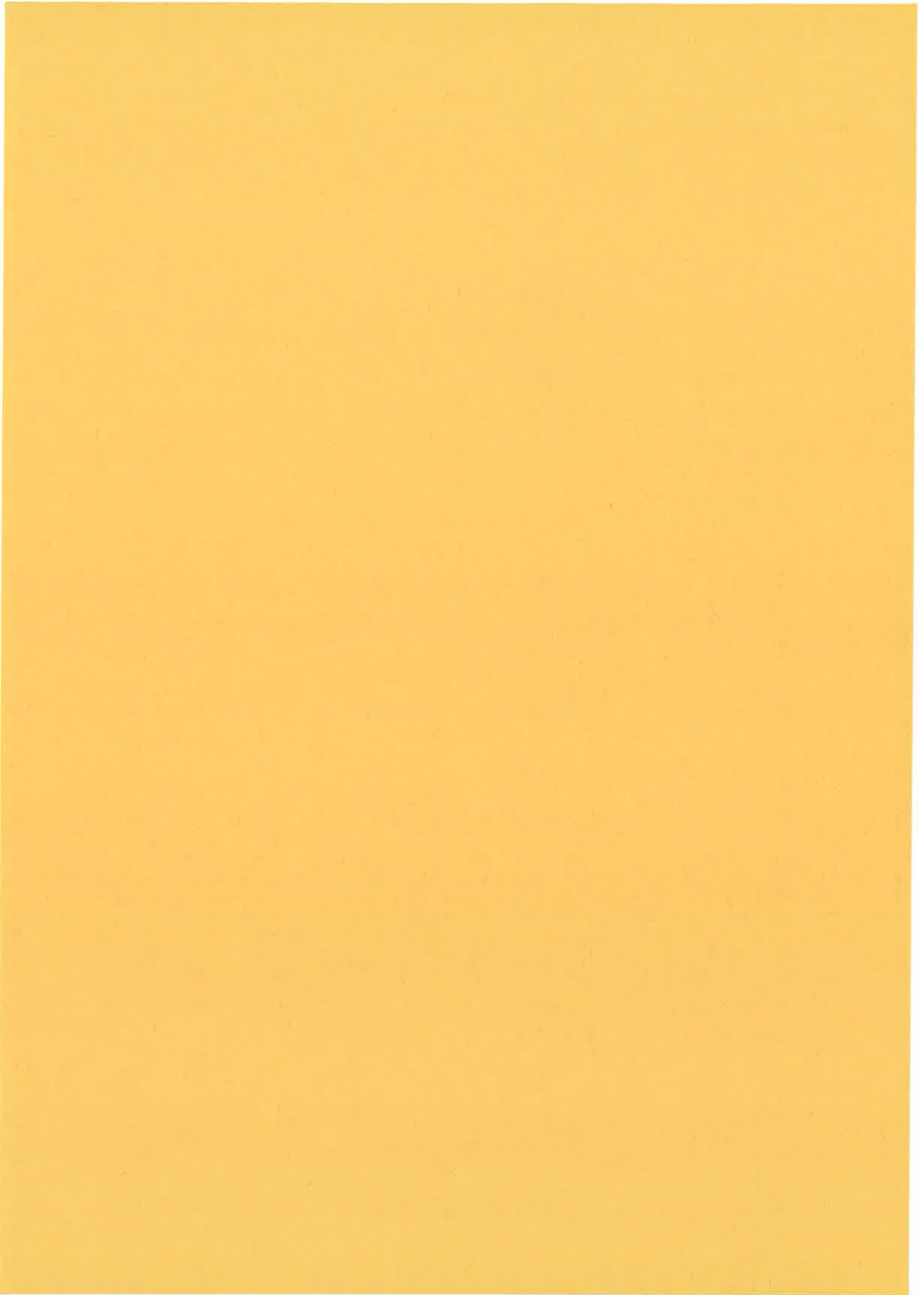
$$\vec{E}_3(\vec{r}, t) = \vec{e}_1 \frac{\mathcal{E}_3(t)}{2} e^{i(\omega t - \vec{k}_3 \cdot \vec{r})} + \text{C.C.} \quad \text{I-33}$$

La transition excitée est celle de  $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ . La quantité induite à l'ordre le plus bas est  $\tilde{\rho}_{02}^{(3)}$  :

$$\tilde{\rho}_{02}^{(3)} \propto N W(\Delta) e^{i\Delta(t-t_s-t_{12})} e^{i\omega t} e^{-i(\vec{k}_3 + \vec{K}) \cdot \vec{r}} Y(t-t_s) \quad \text{I-34}$$

Cette cohérence, s'il y a accord de phase, rayonnera dans la direction  $\vec{k}_3 + \vec{K}$  et sur la transition  $|0\rangle \rightarrow |2\rangle$  donc avec une polarisation dirigée suivant  $\vec{e}_2$  orthogonale à celle du champ  $\vec{E}_3$  qui l'a induit. La dépendance temporelle de ce signal est la même que celle du signal diffracté sur le réseau de population (dans la direction  $\vec{k}_3 + \vec{K}$ ). L'émission, notamment, n'est plus possible lorsque  $t_{12} < -\Delta_D^{-1}$ . Lorsque la polarisation de l'impulsion sonde est parallèle à  $\vec{e}_2$  le signal sera émis dans la direction  $(\vec{k}_3 - \vec{K})$ , aura pour polarisation celle de l'impulsion 1 et cette émission sera impossible pour  $t_{12} > \Delta_D^{-1}$ . La figure I-6 résume ces différents cas de figure.







*CHAPITRE II*

**ANALYSE DES SIGNAUX TRANSITOIRES COHERENTS INDUITS  
PAR DES IMPULSIONS STOCHASTIQUES**

**I- INTRODUCTION**

Nous avons décrit dans le chapitre précédent, la détection optique des atomes excités successivement par deux impulsions décalées dans le temps. Ce procédé fait partie d'une classe de techniques pompe-sonde : des impulsions dites de pompe préparent le système dans un état donné. Après leur extinction une autre impulsion sonde le système. Un signal se construit alors à partir de la quantité atomique  $\rho$  induite par les impulsions de pompe (dans le chapitre précédent, pour un système à deux niveaux,  $\rho$  correspond à  $n_{01}^{\pm 1}(\Delta)$  pour le signal émis dans la direction  $\vec{k}_3 \mp \vec{K}$ , et pour un système en V il correspond à  $\rho_{12}$  ou  $\rho_{21}$  pour le signal émis dans la direction  $\vec{k}_3 - \vec{K}$  ou  $\vec{k}_3 + \vec{K}$ ). L'analyse du signal donne accès à la quantité source  $\rho$ . Nous avons supposé que tous les champs étaient cohérents. Si les impulsions utilisées sont stochastiques (c'est à dire si la phase et l'amplitude fluctuent dans le temps et d'un tir laser à l'autre), l'état du système atomique ayant interagi avec les deux impulsions de pompe peut toujours être sondé par diffraction sur le réseau de Bragg inscrit. Cependant cette situation diffère de celle de l'excitation cohérente par le caractère fluctuant de la quantité atomique  $\rho$  induite. Pour connaître les propriétés de  $\rho$  au delà de ses fluctuations tir à tir, on doit considérer ses moments statistiques, qui coïncident avec les valeurs moyennes

effectuées sur un très grand nombre de réalisations de l'expérience. Dans ce chapitre, nous exposerons le principe des deux méthodes expérimentales que nous utilisons pour détecter le signal émis par l'échantillon et extraire des informations sur les moments statistiques de  $\rho$ . La première méthode consiste en une mesure de l'énergie du signal émis, qui donne accès à un moment d'ordre deux de  $\rho$ . La seconde méthode consiste en une mesure de la corrélation entre l'impulsion sonde et le signal auquel elle donne naissance [33, 34]. C'est le moment d'ordre un de  $\rho$  qui est ainsi déterminé. L'étude des signaux en fonction de paramètres caractéristiques de l'excitation (décalage  $t_{12}$ , puissance des champs) permet de suivre l'évolution de ces moments statistiques. Nous aborderons cette étude dans les chapitres suivants. Nous supposons tout au long de ce chapitre que l'impulsion sonde est stochastique tout comme les impulsions de pompe mais elle ne leurs est pas corrélée. Son intensité est supposée faible. Dans le paragraphe qui suit, nous précisons les propriétés du champ stochastique.

## II- MODELE DU CHAMP

Les sources lasers que nous utilisons émettent un rayonnement caractérisé par un champ aléatoire [33, 35, 36]. A chaque tir laser le champ fluctue au cours du temps et d'un tir à l'autre ses fluctuations sont différentes. Nous supposons qu'il s'écrit d'une façon générale comme:

$$E(t) = \varepsilon(t) e^{i\omega t} + C.C. \quad \text{II-1}$$

Il présente des fluctuations de phase et d'amplitude. Ses premiers moments statistiques vérifient les relations suivantes [33, 37, 38]:

$$\begin{aligned} \langle \mathcal{E}(t) \rangle &= 0 \\ \langle \mathcal{E}(t) \mathcal{E}(t-\tau) \rangle &= 0 \\ \langle \mathcal{E}(t) \mathcal{E}^*(t-\tau) \rangle &= \alpha(t,\tau) \end{aligned} \quad \text{II-2}$$

Le signe  $\langle \rangle$  désigne la moyenne statistique qui s'identifie à la moyenne obtenue sur un grand nombre de tirs lasers (idéalement infini) [39]. En fonction de  $\tau$ ,  $\alpha(t,\tau)$  est différente de zéro et présente un pic sur un domaine de largeur  $\tau_c$  très petite par rapport à la durée  $\tau_L$  des impulsions. On reconnaît dans  $\tau_c$  le temps de cohérence de la lumière qui coïncide avec l'inverse de la largeur spectrale [33, 39]. En fonction de  $t$ ,  $\alpha(t,\tau)$  représente l'enveloppe lentement variable de l'impulsion. Une définition commode de  $\tau_L$  et de  $\tau_c$  est :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau_L = \frac{1}{\alpha(0,0)} \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha(t,0) dt \\ \tau_c = \frac{1}{\alpha(0,0)} \int_0^{+\infty} \alpha(0,\tau) d\tau \end{array} \right. \quad \text{II-3}$$

La fonction  $\alpha(0,\tau)$  est réelle. La dernière égalité du système II-2 signifie que les valeurs du champ aux instants  $t$  et  $t + \tau$  sont décorréliées dès que  $\tau > \tau_c$ . Le champ peut donc être vu en moyenne comme un train de  $\tau_L/\tau_c$  impulsions élémentaires de durée  $\tau_c$  chacune et décorréliées les unes des autres [40, 41].

### III- EXPRESSION DU SIGNAL EMIS

Le système atomique est préparé par les deux impulsions de pompe dans un état défini. On sonde alors par une impulsion stochastique d'intensité faible

de vecteur d'onde  $\vec{k}$  et d'amplitude  $\mathcal{E}(t)$ . Sa polarisation est identique à celle de l'impulsion 1. Son temps de cohérence  $\tau_c$  et sa durée  $\tau_L$  vérifient :

$$\tau_c \ll \Delta_D^{-1} \ll \tau_L \quad \text{II-4}$$

Un signal est émis dans la direction  $\vec{k}_e = \vec{k} + \vec{K}$  où  $\vec{K}$  est la différence des vecteurs d'onde  $\vec{k}_2$  et  $\vec{k}_1$  des deux premières impulsions. La cohérence induite qui est à l'origine de ce signal s'écrit:

$$\tilde{\rho}_e(\vec{r}, \Delta, t) = \rho_e e^{i(\omega t - \vec{k}_e \cdot \vec{r})} \quad \text{II-5}$$

D'après les résultats du chapitre I,  $\rho_e$  est donné à l'ordre le plus bas du développement perturbatif par l'équation :

$$i \dot{\rho}_e + i \Delta \rho_e = \chi(t) \rho(\Delta) e^{-i \vec{K} \cdot \vec{r}} \quad \text{II-6}$$

où  $\rho(\Delta)$  représente  $n_{01}^{-1}(\Delta)$  dans le cas où on considère un système à deux niveaux et  $\rho_{12}(\Delta)$  pour un système à trois niveaux en V. L'égalité II-6 peut s'intégrer pour donner :

$$\rho_e = -i \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{+\infty} \chi(t') \rho(\Delta) e^{i\Delta(t-t')} d\Delta e^{-i\vec{K} \cdot \vec{r}} \quad \text{II-7}$$

Le champ émis s'exprime alors sous la forme :

$$E_e(\vec{r}, t) = \frac{\mathcal{E}_e(t)}{2} e^{i(\omega t - \vec{k}_e \cdot \vec{r})} + \text{C.C.} \quad \text{II-8}$$

Avec :

$$\varepsilon_e(t) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \chi(t') \int \rho(\Delta) e^{i\Delta(t-t')} d\Delta \quad \text{II-9}$$

#### IV- ENERGIE DU SIGNAL EMIS

L'énergie du signal (moyennée)  $\langle W \rangle$  s'écrit à un facteur de proportionalité près :

$$\langle W \rangle = \langle \int_{-\infty}^{+\infty} \varepsilon_e(t) \varepsilon_e^*(t) dt \rangle \quad \text{II-10}$$

ou encore d'après II-9 :

$$\langle W \rangle \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^t dt'' \int d\Delta d\Delta' \langle \chi(t') \chi^*(t'') \rho(\Delta) \rho^*(\Delta') \rangle \times e^{i\Delta(t-t')} e^{-i\Delta'(t-t'')} \quad \text{II-11}$$

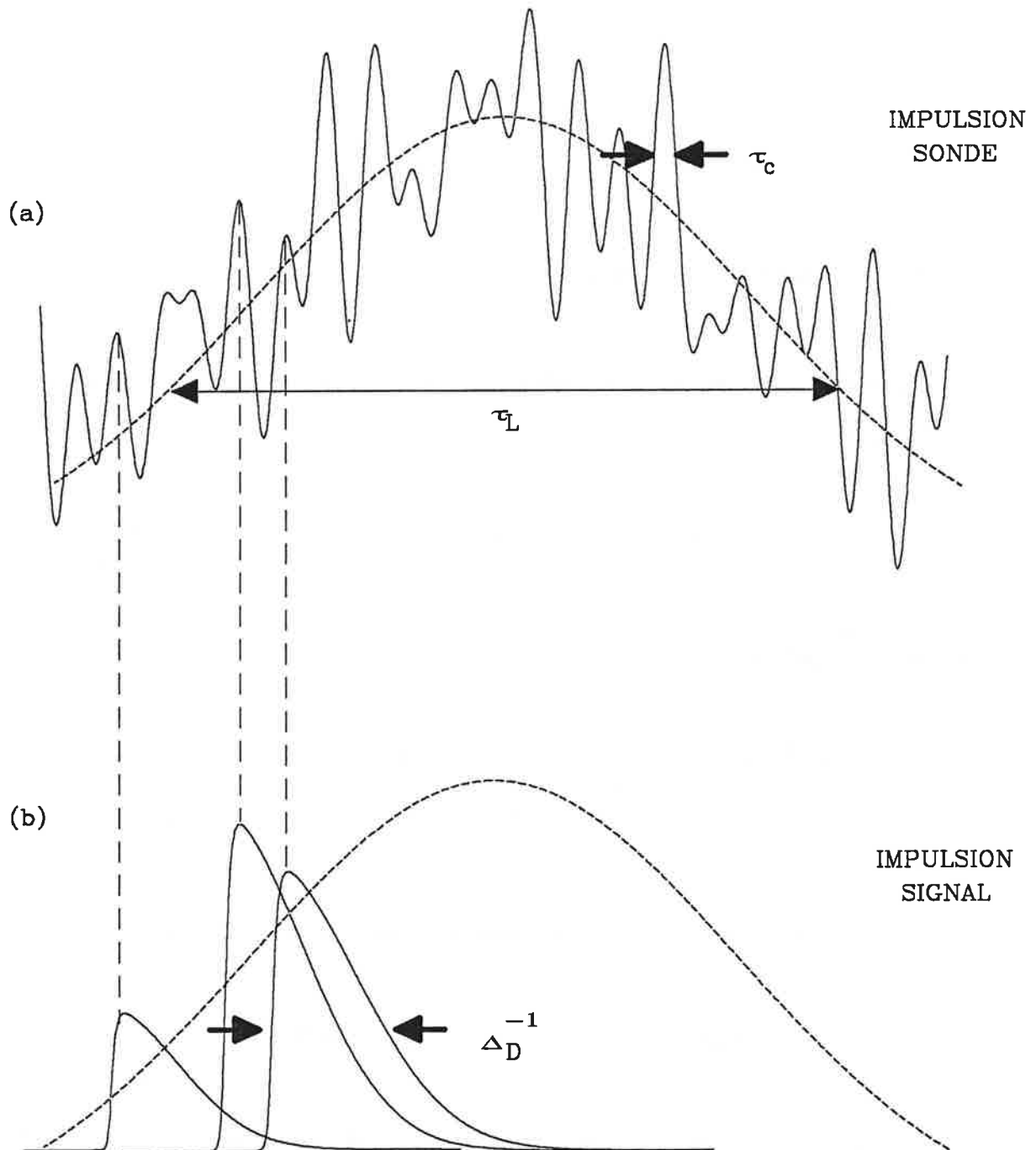
L'impulsion sonde étant décorrélée des impulsions de pompe, on peut écrire :

$$\langle \chi(t') \chi^*(t'') \rho(\Delta) \rho^*(\Delta') \rangle = \langle \chi(t') \chi^*(t'') \rangle \langle \rho(\Delta) \rho^*(\Delta') \rangle \quad \text{II-12}$$

$\langle \chi(t') \chi^*(t'') \rangle$  a une largeur  $\tau_L$  en fonction de  $t'$  et une largeur  $\tau_c$  en fonction de  $(t'-t'')$ . Il vient alors :

$$\langle W \rangle = \frac{\tau_L}{\tau_c} \langle W \rangle_i \quad \text{II-13}$$

où  $\langle W \rangle_i$  est l'énergie émise par le système quand on le sonde par une impulsion courte de durée  $\tau_c$ . Ce résultat s'interprète à l'aide de l'image



**FIGURE II-1:** Formation du signal.

(a): Champ sonde vu comme un train d'impulsion élémentaires de durée  $\tau_c$ , dans une enveloppe de durée  $\tau_L$ .

(b): Champ signal où on a représenté trois réponses élémentaires de durée  $\Delta_D^{-1}$  associées par des traits aux impulsions élémentaires qui leur ont donné naissance.

donnée pour le champ stochastique dans le paragraphe II. Le champ sonde étant faible, chaque impulsion élémentaire de durée  $\tau_c$  dans le champ sonde donne indépendamment naissance à une réponse élémentaire. Le champ total est alors la somme de tout les champs élémentaires émis (Fig.II-1). Tout comme les impulsions qui leur ont donné naissance, ces diverses contributions sont décorrélées les unes des autres. L'énergie totale est obtenue simplement en sommant les  $(\tau_L/\tau_c)$  énergies élémentaires. L'expression II-13 peut être simplifiée en tenant compte des relations II-4, II-12 et de l'égalité suivante:

$$\frac{i}{\Delta - \Delta'} = -\pi \delta(\Delta - \Delta') + i \mathcal{P}\left(\frac{1}{\Delta - \Delta'}\right) \quad \text{II-14}$$

où  $\delta$  désigne la fonction de Dirac et  $\mathcal{P}$  la partie principale, l'expression de l'énergie devient :

$$\langle W \rangle \propto s \left[ -\pi \int \langle \rho(\Delta) \rho^*(\Delta) \rangle d\Delta + i \int d\Delta d\Delta' \mathcal{P}\left(\frac{1}{\Delta - \Delta'}\right) \langle \rho(\Delta) \rho^*(\Delta') \rangle \right]$$

II-15

où  $s = \int \langle |\chi|^2 \rangle dt \tau_c$  est le paramètre de saturation associé au champ sonde.

Les quantités  $\langle \rho(\Delta) \rho^*(\Delta) \rangle$  et  $\langle W \rangle$  étant réelles,  $\langle W \rangle$  peut se réécrire finalement sous la forme d'une somme de deux termes réels  $w_1$  et  $w_2$  tels que :

$$\begin{cases} w_1 \propto s \int \langle \rho(\Delta) \rho^*(\Delta) \rangle d\Delta \\ w_2 \propto s \int i \mathcal{P}\left(\frac{1}{\Delta - \Delta'}\right) \langle \rho(\Delta) \rho^*(\Delta') \rangle d\Delta d\Delta' \end{cases} \quad \text{II-16}$$

Ces deux contributions à l'énergie font intervenir un moment d'ordre deux de la quantité sondée. La relation des quantités  $\langle \rho(\Delta) \rho^*(\Delta') \rangle$  avec les fonctions

de corrélation entre atomes situés en des points différents de l'espace des phases peut être établie simplement dans le cas du système à deux niveaux.  $\rho$  désigne alors les composantes  $\pm 1$  du réseau de population induit par les deux impulsions excitatrices, on a par définition :

$$n_{01}^{(-1)} = \int n_{01}(\vec{r}, \Delta) e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \quad \text{II-17}$$

où  $n_{01}$  désigne la différence de population entre 0 et 1. En remplaçant dans II-16 il vient alors :

$$\begin{cases} W_1 \propto s \int d\vec{r} d\vec{r}' d\Delta \langle n_{01}(\vec{r}, \Delta) n_{01}(\vec{r}', \Delta) \rangle e^{+i\vec{K} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \\ W_2 \propto i s \int d\vec{r} d\vec{r}' d\Delta d\Delta' \mathcal{P}\left(\frac{1}{\Delta - \Delta'}\right) \langle n_{01}(\vec{r}, \Delta) n_{01}(\vec{r}', \Delta') \rangle e^{+i\vec{K} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \end{cases} \quad \text{II-18}$$

La contribution  $W_1$  s'exprime en terme de corrélations entre atomes de la même classe de vitesse situés à des positions différentes de l'échantillon. La contribution  $W_2$  met en jeu la corrélation entre des atomes de positions et de vitesse différentes.

Dans le paragraphe qui suit, nous présentons la technique de corrélation d'amplitude qui est sensible au *champ* du signal émis et non pas à son intensité.

## V- TECHNIQUE DE CORRELATION CROISEE D'AMPLITUDE

Le principe de cette méthode [33, 34, 42] est le suivant. On sépare un faisceau laser en deux parties, l'une constitue le faisceau sonde, l'autre



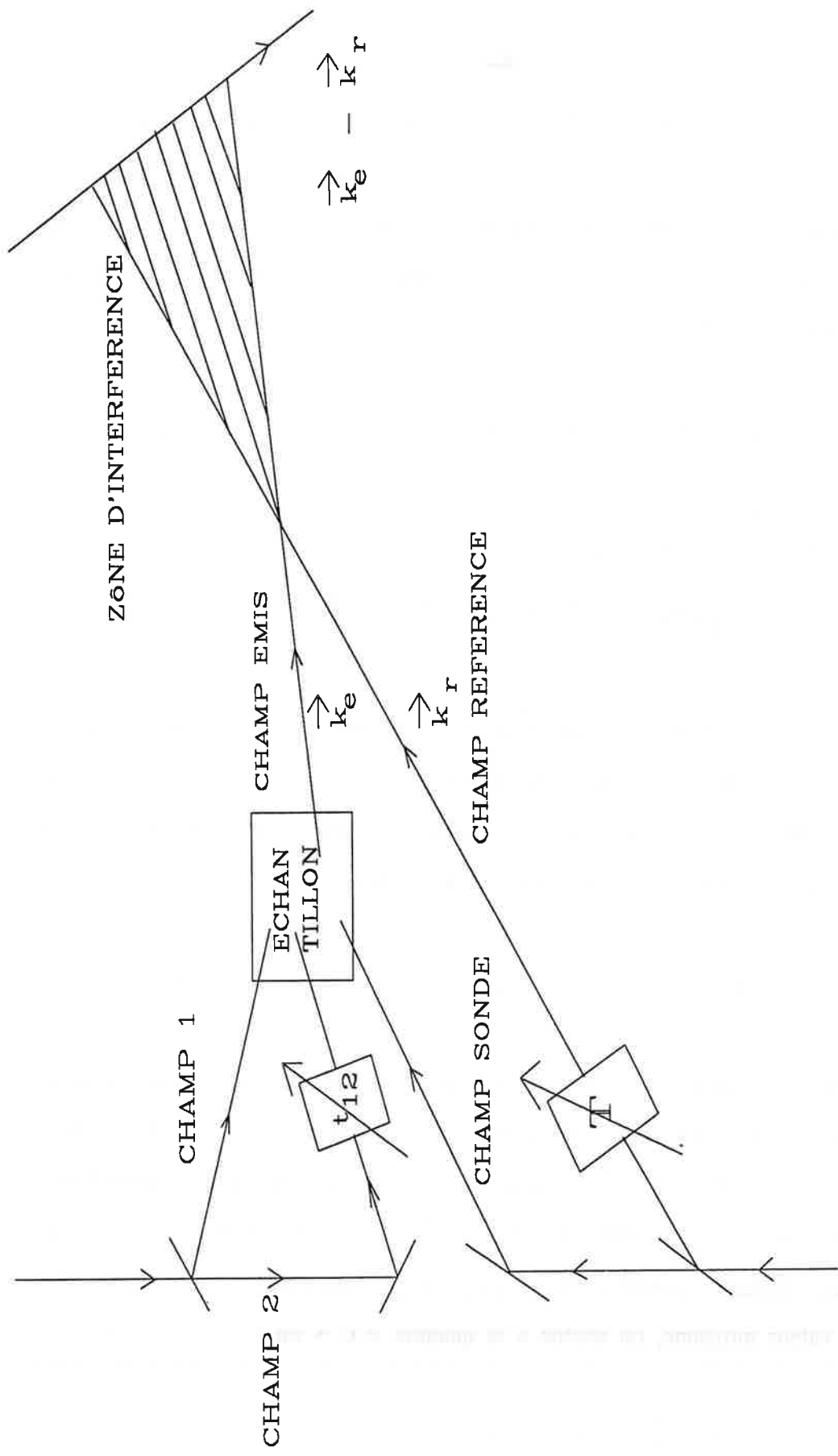


FIGURE II-2: Schéma de principe de l'expérience de corrélation d'amplitude.  
 Les champs sonde et référence sont issus d'un même champ initial.

constitue le faisceau référence. Le champ sonde  $\varepsilon(t)$  induit le signal décrit par l'équation II-9. On forme une figure d'interférence entre le signal et la référence qui apparaît comme la réplique, décalée dans le temps, du champ sonde (Fig. II-2). Au niveau de la zone d'interférence, les champs référence et signal s'écrivent respectivement :

$$E_r(\vec{r},t) = \varepsilon(t-T) e^{i(\omega t - \vec{k}_r \cdot \vec{r} + \Phi_0)} + C.C. \quad \text{II-19}$$

$$\begin{aligned} E_e(\vec{r},t) &= \varepsilon_e(t) e^{i(\omega t - \vec{k}_e \cdot \vec{r})} + C.C. \\ &= \int_0^\infty d\tau' \varepsilon(t-\tau') \int d\Delta \rho(\Delta) e^{i\Delta\tau} e^{i(\omega t - \vec{k}_e \cdot \vec{r})} + C.C. \end{aligned}$$

II-20

Le temps T représente le décalage temporel entre sonde et référence. La phase  $\Phi_0$  prend en compte l'ensemble des déphasages accumulés le long des trajets différents suivis par le faisceau de référence d'une part, et le faisceau sonde puis signal d'autre part. L'intensité totale au point  $\vec{r}$  s'écrit :

$$I(\vec{r},t) = | E_e(\vec{r},t) + E_r(\vec{r},t) |^2 \quad \text{II-21}$$

Les détecteurs optiques donnent généralement accès à la densité spatiale d'énergie reçue au point  $\vec{r}$ . Cette quantité est proportionnelle à  $\int I(\vec{r},t) dt$ . Le terme croisé  $E_e(\vec{r},t) \cdot E_r^*(\vec{r},t)$  dans  $I(\vec{r},t)$  est affecté d'une modulation spatiale produite par le facteur de phase  $e^{i(\vec{k}_r - \vec{k}_e) \cdot \vec{r}}$ . Ce terme représente le système de franges d'interférences [33, 43]. Mesurant le contraste des franges en valeur moyenne, on accède à la quantité  $\langle C \rangle$  où :

$$C = \int \varepsilon^*(t-T) \varepsilon_e(t) dt \quad \text{II-22}$$

est la fonction de corrélation croisée entre les faisceaux signal et référence. La quantité mesurée peut se réécrire d'après II-20 sous la forme :

$$\int dt \int_0^{\infty} d\tau' \langle \mathcal{E}^*(t-T) \mathcal{E}(t-\tau') \rangle = \int \langle \rho(\Delta) \rangle e^{i\Delta\tau'} d\Delta \quad \text{II-23}$$

où apparaît le moment statistique d'ordre un de la quantité sondée  $\rho(\Delta)$ .

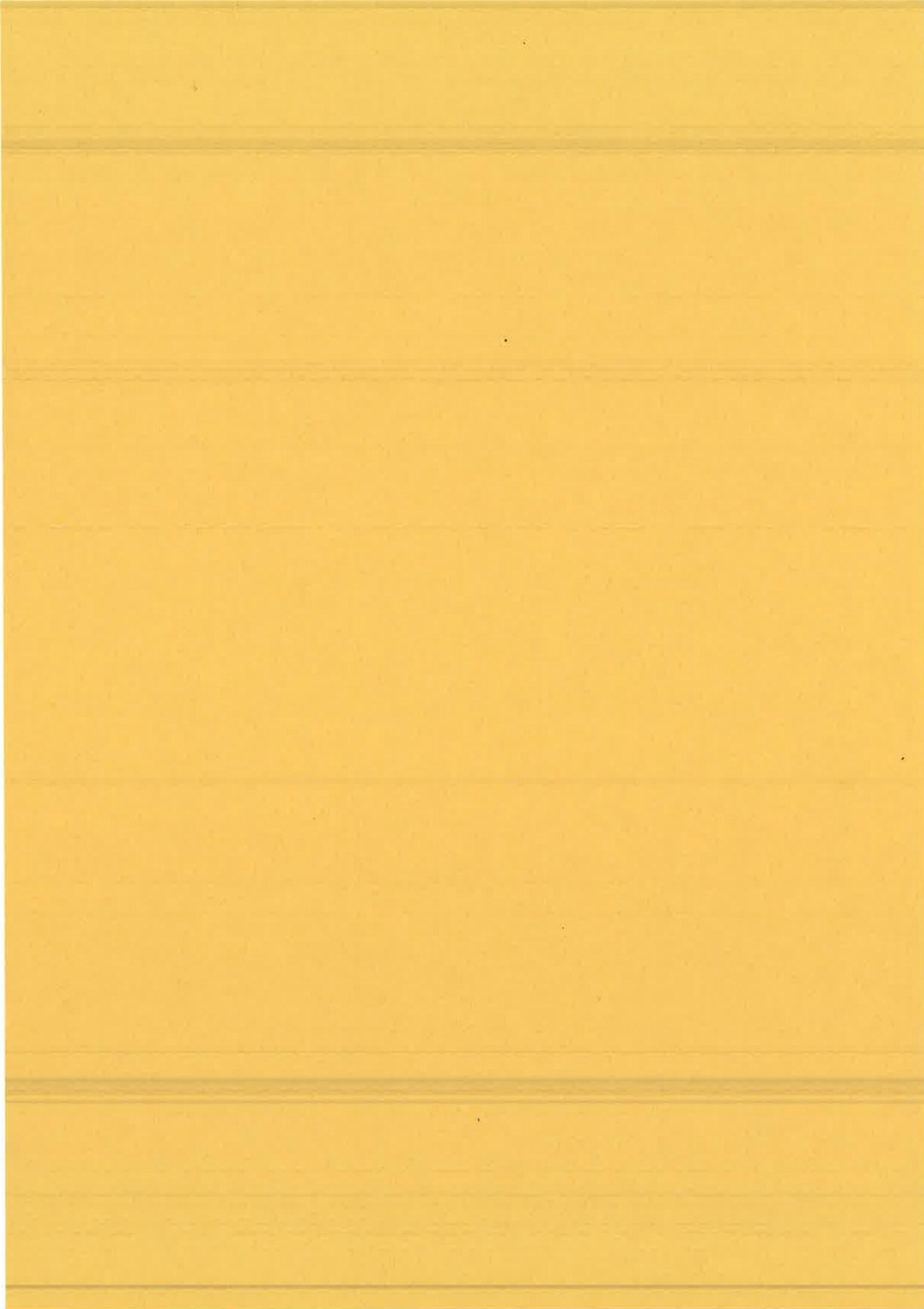
Tout au long de notre étude des effets de puissance, nous adoptons pour paramètre de contrôle l'intervalle de temps  $t_{12}$  entre les deux premières impulsions excitatrices. Les propriétés du moment d'ordre un de  $\rho(\Delta)$  sont observées en enregistrant le contraste des franges en fonction du décalage temporel  $t_{12}$ . On peut simplifier l'expression ci-dessus en notant que la largeur de  $\rho(\Delta)$  ne peut excéder  $\Delta_D$ . Le temps caractéristique d'évolution de  $\int \langle \rho(\Delta) \rangle e^{i\Delta\tau'} d\Delta$  est donc au moins égal à  $\Delta_D^{-1}$ . C'est une fonction lentement variable de  $\tau'$  par rapport à  $\langle \mathcal{E}^*(t-T) \mathcal{E}(t-\tau') \rangle$  qui, par définition, n'est autre que  $\alpha(t-T, T-\tau')$ . Pourvu que le décalage  $T$  soit choisi de telle sorte que  $\tau_c \ll T \ll \Delta_D^{-1}$ , l'expression II-23 se réduit donc à :

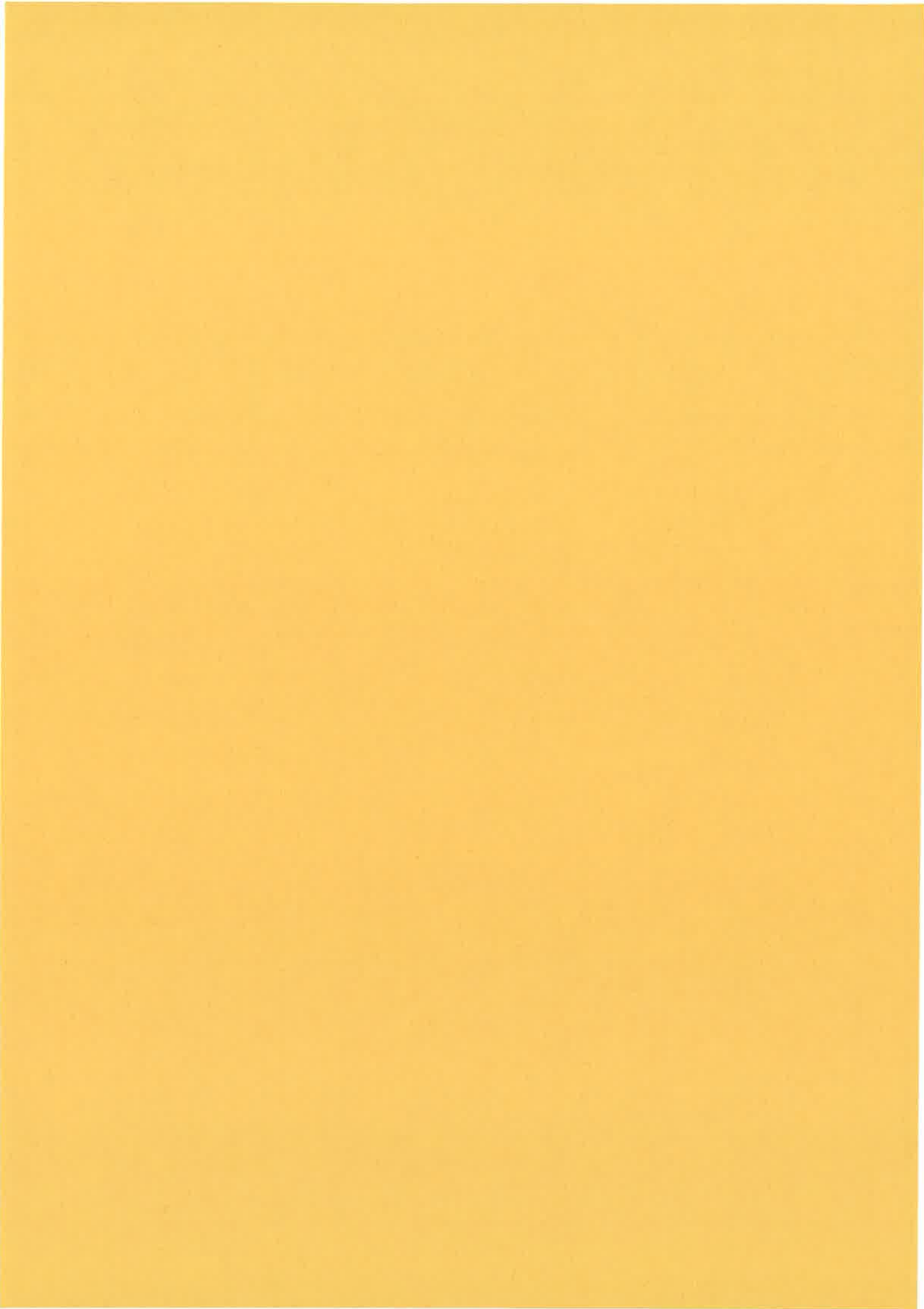
$$2 \alpha(0,0) \tau_c \tau_L \int \langle \rho(\Delta) \rangle d\Delta \quad \text{II-24}$$

La quantité obtenue est indépendante de  $T$ , et proportionnelle à l'intégrale du moment d'ordre un de  $\rho(\Delta)$  sur l'ensemble des classes de vitesse.

Pour résumer, le système atomique étant préalablement préparé par des impulsions stochastiques induisant une quantité fluctuante  $\rho$ , nous disposons de deux méthodes expérimentales nous permettant d'avoir accès directement aux moments statistiques de  $\rho$  (moment d'ordre deux lors d'une mesure de l'énergie et moment d'ordre un lors d'une mesure par technique de corrélation

d'amplitude). L'évolution de ces moments statistiques en fonction des paramètres caractéristiques de la séquence excitatrice qui prépare le système (décalage  $t_{12}$ , puissance des champs ) est traitée dans la suite de ce mémoire.





### CHAPITRE III

## EFFETS DE PUISSANCE DANS UN SYSTEME A DEUX NIVEAUX

### I- INTRODUCTION

Dans ce chapitre sont étudiés les effets de puissance qui se manifestent dans un système à deux niveaux excité dans la configuration expérimentale décrite dans les chapitres précédents. Le régime de champ faible est défini comme celui que décrit correctement un développement perturbatif des quantités atomiques à l'ordre le plus bas de la puissance des champs. Nous nous proposons d'explorer le régime de champ fort, où cette approximation n'est plus suffisante. Le temps caractéristique de l'évolution du système atomique en présence du champ dépend de la force de ce champ. Il est représenté par :

$$T = 1/(\chi^{(0)})^2 \tau_c \quad \text{III-1}$$

où  $\chi^{(0)}$  est la fréquence de Rabi quadratique moyenne du champ et  $\tau_c$  son temps de cohérence. Le régime de champ fort correspond à la situation où le système atomique est soumis à l'excitation pendant un intervalle de temps plus long que T [7, 44].

Diverses études ont été consacrées aux effets de puissance qui apparaissent quand le système atomique est excité par deux impulsions chaotiques répliques l'une de l'autre et décalées dans le temps [13-19]. En

particulier, la situation où un seul des champs qui excitent le système est fort a été explorée. Dans ce régime les moments d'ordre deux des quantités atomiques ont pu être déterminés lorsqu'est vérifiée la relation :

$$\chi^{(0)} \tau_c \ll 1 \quad \text{III - 2}$$

qui impose une borne supérieure à la force du champ fort. L'approche théorique du problème dans la limite imposée par III- 2 est différente selon que le décalage  $t_{12}$  est plus grand ou plus petit que  $T$ . Quand  $t_{12} < T$ , le calcul est basé sur une technique de décorrélation standard [45, 15]. Lorsque  $t_{12} > T$  ce traitement cesse d'être valable mais une méthode diagrammatique permet de rendre compte des observations expérimentales [13, 14, 16]. L'étude du cas où le champ est arbitrairement intense ( $\chi^{(0)}\tau_c < 1$  ou  $\chi^{(0)}\tau_c > 1$ ) a été effectuée récemment par Zoller [17]. Des hypothèses supplémentaires sur les propriétés du champ sont alors nécessaires. Des moments d'ordre un ont alors été évalués pour permettre le calcul de l'absorption d'un faisceau sonde.

L'étude théorique du cas où les deux impulsions de pompe sont intenses a été réalisée par Finkelstein et Berman [18, 19] dans la situation où les conditions  $t_{12} < T$  et  $\chi^{(0)}\tau_c \ll 1$  sont vérifiées pour chacun des deux champs. La procédure de décorrélation standard est alors possible et permet le calcul des moments d'ordre deux. La prévision de structures temporelles plus courtes que  $\tau_c$  est un résultat important qui ressort de cette étude.

L'étude expérimentale de ce dernier cas est considérée dans ce chapitre. Nous présenterons les résultats expérimentaux que nous avons obtenus et nous donnerons une interprétation de la structure du signal en termes d'évolution de la fonction de corrélation entre atomes situés à des positions différentes et soumis à une excitation chaotique qui présente une structure spatiale



périodique.

## II- DIFFRACTION PAR UN RESEAU DE POPULATION INDUIT PAR DES CHAMPS INTENSES

### 1)- Situation expérimentale

Le système considéré est un système à deux niveaux interagissant de façon résonnante avec le champ composé de deux impulsions obtenues par dédoublement d'une seule impulsion. Leurs vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  forment un petit angle entre eux. On désigne par  $t_{12}$  le décalage temporel entre les deux impulsions ( $t_{12} > 0$  si l'impulsion 2 précède l'impulsion 1). Les champs  $E_1$  et  $E_2$  associés aux deux impulsions sont tel que:

$$E_2(t) = m E_1(t-t_{12}) \quad \text{III-3}$$

On conviendra que l'impulsion 1 est plus intense que l'impulsion 2 ( $m < 1$ ). On notera par  $T^{(i)}$  le temps d'évolution du système soumis à l'impulsion numéro  $i$  ( $i = 1, 2$ ) et par  $\Delta_D$  la largeur Doppler. On se place dans des conditions où les inégalités suivantes sont vérifiées :

$$t_{12}, \tau_c \ll T^{(1)} \ll \Delta_D^{-1} \ll \tau_L \quad \text{III-4}$$

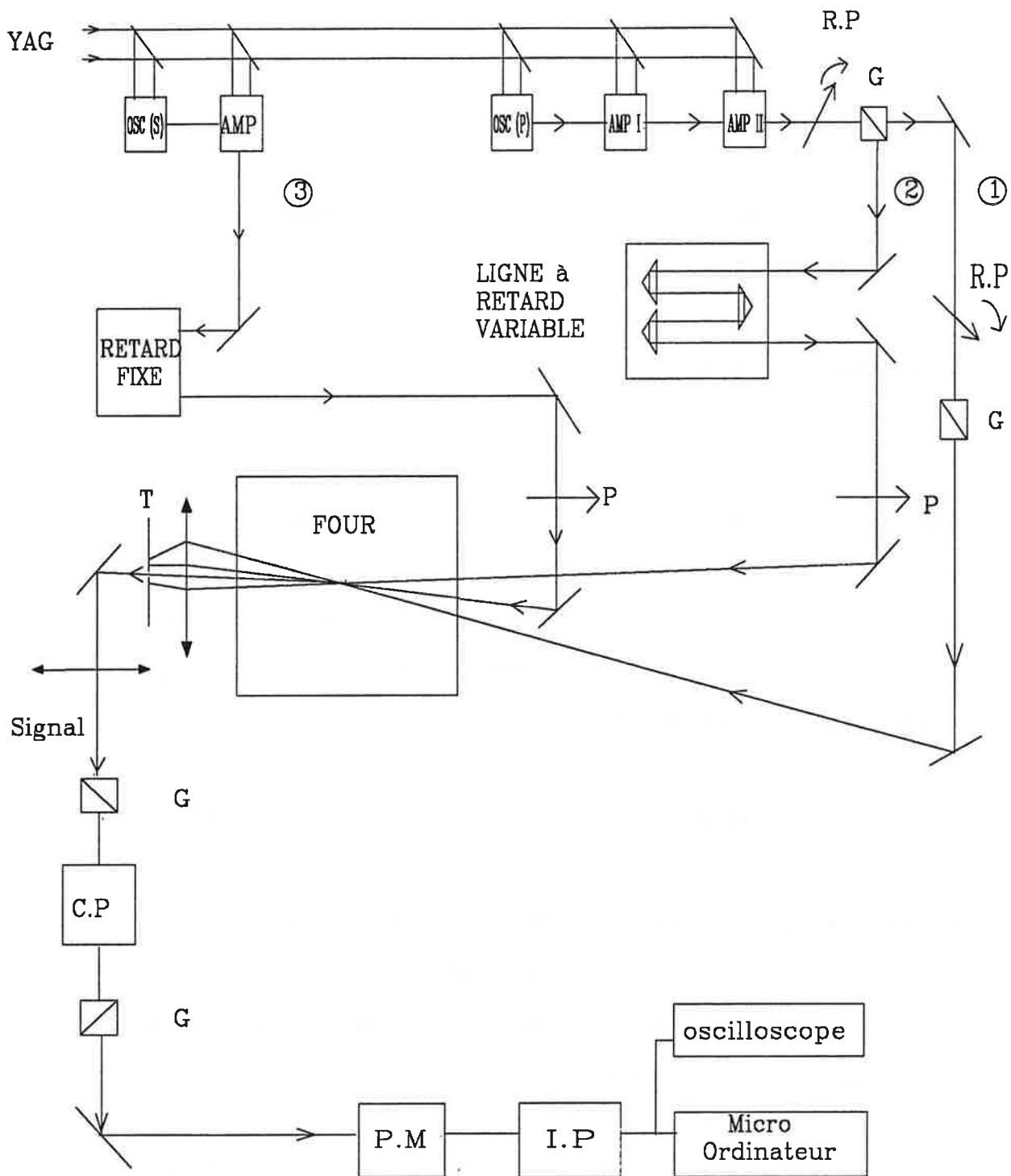
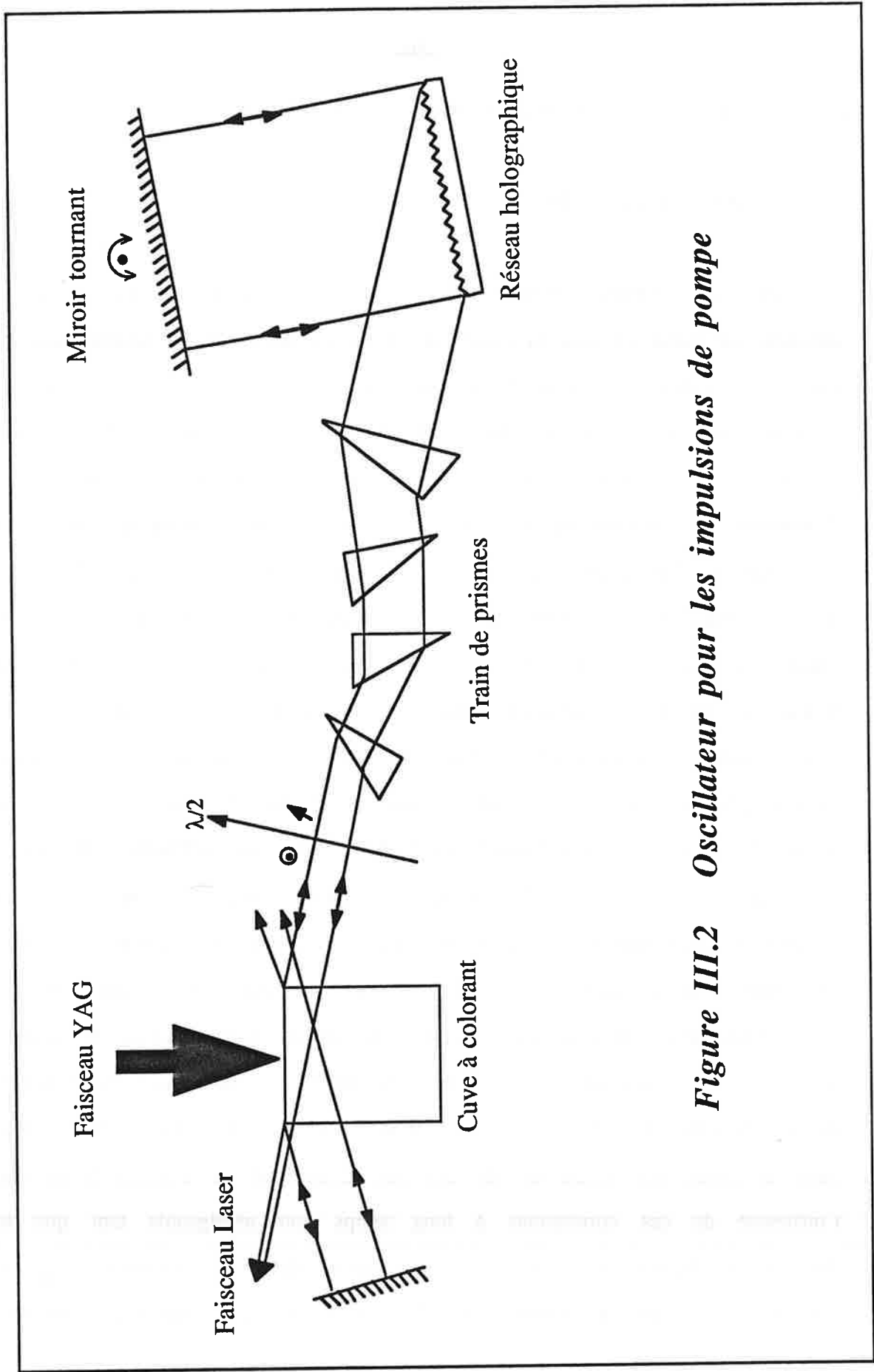


FIGURE III-1: Dispositif expérimental.

OSC (P) et OSC (S) sont respectivement les oscillateurs qui délivrent les impulsions de pompe et l'impulsion sonde; AMP: amplificateur; R.P: rotateur de polarisation; G: prisme de Glan; T: trou de filtrage; P: polariseur; C.P: cellule de Pockels; P.M: photomultiplicateur; I.P: intégrateur à porte.

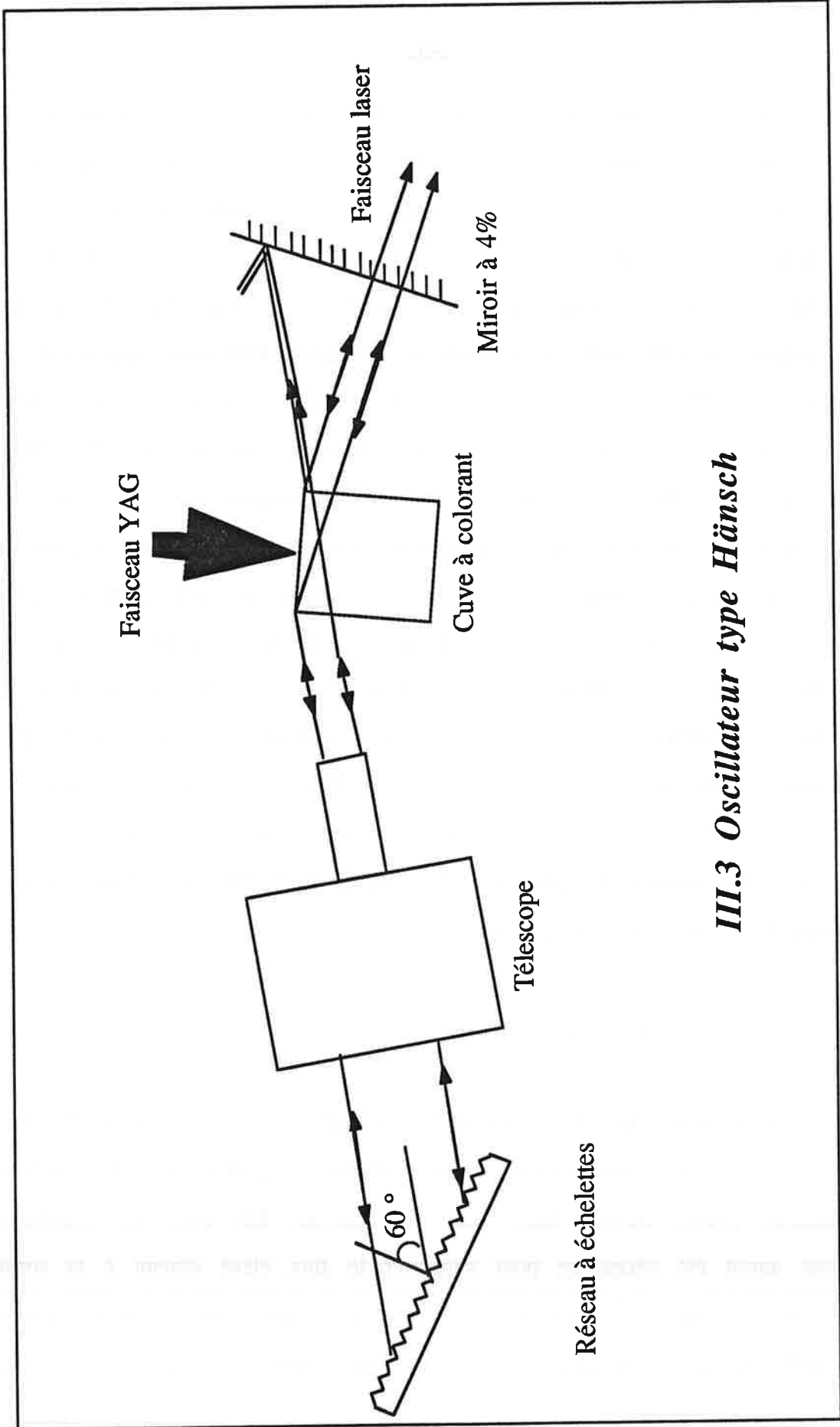


*Figure III.2 Oscillateur pour les impulsions de pompe*

## 2)- Description du montage expérimental (Fig. III- 1)

### a)- SOURCES LASERS

Un laser Nd-YAG Q-Switch délivre, à la cadence de 15 Hz, des impulsions doublées en fréquence dont la durée est 12 ns. Ce laser sert de pompe pour les lasers à colorant. Le premier est constitué d'un oscillateur avec réseau en incidence rasante suivi de deux amplificateurs. Cette source délivre une impulsion qui, dédoublée, donnera naissance aux deux premières impulsions de l'excitation. Le schéma de la figure III-2 montre les éléments présents dans la cavité de l'oscillateur. Le train de prismes sert à étaler la tache laser sur le réseau, afin d'éclairer un plus grand nombre de traits du réseau. Les prismes sont disposés de telle sorte que l'angle d'incidence sur une face est proche de l'angle de Brewster tandis que l'autre face traitée anti reflet est éclairée sous incidence normale. Une lame  $\lambda/2$  sert à orienter la polarisation dans le plan d'incidence à l'entrée du train de prisme. Le réseau présent dans la cavité est un réseau holographique à 2400 traits par millimètre. Il permet d'atteindre à la sortie de l'oscillateur des largeurs spectrales de l'ordre de 8 GHz. En masquant partiellement le réseau, on obtient des largeurs spectrales plus grandes et en enlevant le train de prismes, on peut atteindre 100 GHz. La cavité laser étant fermée, une structure de modes apparaît dans le spectre d'émission. La fonction  $\alpha(t,\tau)$  définie au (II-2) fait apparaître en fonction de  $\tau$ , des pics de corrélation à des temps multiples du temps d'aller-retour dans la cavité (ce temps est de 3.6 ns). Cependant on s'attend à ce que l'influence de ces corrélations à long temps soit négligeable tant que le domaine de décalage  $t_{12}$  balayé est plus faible (dans nos expériences  $|t_{12}| < 600$  ps). Le modèle du champ décrit dans le chapitre précédent peut alors être



*III.3 Oscillateur type Hänsch*

utilisé dans ce domaine temporel. A la sortie du deuxième amplificateur, les impulsions ont une durée de 10 ns et une énergie de 6 mJ. Afin de limiter les effets des couplages par émission spontanée entre les différents éléments, on a placé les amplificateurs et l'oscillateur à des positions suffisamment éloignées les unes des autres, fortement retardé le pompage des amplificateurs par rapport à l'émission de l'oscillateur et aussi légèrement désorienté les directions d'émission des amplificateurs par rapport à celle de l'oscillateur. La deuxième source est constituée d'un oscillateur type Hänsch (Fig. III-3) suivi d'un amplificateur. Cette source délivre l'impulsion sonde qui sera ainsi décorrélée des deux autres impulsions. Un télescope à grand facteur de grossissement sert à étaler la tache laser. L'élément sélecteur dans la cavité est un réseau à échelottes à 600 traits par millimètre, utilisé en montage Littrow. L'angle de miroitement est égal à  $30^\circ$ . Le miroir de sortie a un coefficient de réflexion de 4 % . Les études effectuées sur cette source [33] montrent qu'elle peut être considérée avec une bonne approximation comme une source d'émission spontanée amplifiée filtrée spectralement par le réseau. Pour les deux sources, le colorant utilisé est du LDS 698 dilué dans l'éthanol contenu dans des cuves à circulation.

#### b)- LIGNE A RETARD VARIABLE

Pour produire les deux premières impulsions excitatrices à partir d'un seul faisceau laser, nous avons préféré utiliser un prisme de Glan comme séparatrice plutôt qu'une lame semi-réfléchissante. En effet un traitement spécial aurait été nécessaire pour supporter le flux élevé obtenu à la sortie du laser ( $150 \text{ mJ/ cm}^2$ / impulsion). Un rotateur de polarisation (rhomboèdre de Fresnel) incline la polarisation incidente par rapport à l'axe optique du

prisme de Glan. Une des composantes de polarisation traverse le prisme, l'autre est déviée par réflexion totale. En ajustant l'orientation du rotateur de polarisation on peut faire varier l'intensité relative des deux composantes du faisceau ainsi dédoublé. Sur tout le trajet de ces deux impulsions, toujours en raison de la haute densité d'énergie qu'elles transportent, on utilise des prismes à réflexion total à la place des miroirs. Un des faisceaux est envoyé sur la ligne à retard variable pour produire le décalage  $t_{12}$  entre impulsions. La ligne à retard est constituée de trois coins de cube. Deux d'entre eux sont solidaires d'un chariot mobile tandis que le troisième est fixe. Quand la table se déplace de  $x$  le chemin optique varie de  $4x$ . Le domaine temporel exploré est au maximum de 13 ns. La position du chariot mobile est repérée à l'aide de franges de Moiré. La précision sur la mesure est de position est  $10\ \mu\text{m}$ , ce qui donne une résolution ultime de 130 fs sur la mesure de  $t_{12}$ . L'impulsion sonde passe par une ligne à retard fixe, introduisant un décalage de 30 ns par rapport aux deux autres impulsions. A l'entrée du four, un rotateur de polarisation suivi d'un polariseur redresse la polarisation horizontale de l'une des deux premières impulsions et la rend parallèle aux deux autres. Le diamètre des faisceaux est de 3 mm pour les deux premières impulsions et de 1 mm pour l'impulsion sonde.

### c)- SYSTEME ATOMIQUE ET FOUR

Les impulsions lumineuses excitent une vapeur de strontium ( $Z = 38$ ). Les niveaux couplés au champ sont les niveaux  $5s^2\ ^1S_0$  et  $5s5p\ ^3P_1$ . Aussi le système est équivalent à un système à deux niveaux quand les impulsions ont toutes une même polarisation linéaire. La longueur d'onde de la transition est  $\lambda = 689,25\ \text{nm}$ . La durée de vie du niveau supérieur  $^3P_1$  est de  $21\ \mu\text{s}$ , ce qui

permet de négliger les phénomènes de relaxation des populations pendant toute la durée de l'excitation. Enfin la force d'oscillateur ( $10^{-3}$ ) est suffisamment élevée pour atteindre aisément le régime de champ fort.

Le strontium sous forme métallique est contenu dans un four constitué d'un tube en acier inoxydable de longueur 40 cm et de 4 cm de diamètre. Le four est fermé par des fenêtres en silice. Avant le chauffage et l'évaporation du strontium, l'enceinte est mise sous vide par un banc de pompage, constitué d'une pompe primaire à palettes et d'une pompe secondaire à diffusion d'huile. Le vide atteint est de l'ordre de  $10^{-6}$  torr. Le chauffage du four se fait par l'intermédiaire d'un courant électrique parcourant un double fil enroulé sur tout le tube. Une sonde thermocouple dont l'extrémité est posée sur la partie chaude du tube permet de relever la température. Cette température est maintenue à  $420^{\circ}$  C, valeur pour laquelle l'épaisseur optique de l'échantillon est de l'ordre de l'unité. La région utile du four a une longueur de 20 cm, la vapeur de strontium y est confinée par deux écrans percés de 2 trous de 4 mm de diamètre pour le passage des faisceaux lasers. Les écrans sont maintenus à une température voisine de celle de la paroi du four. La surface d'échappement à travers les orifices reste donc très inférieure à la surface d'évaporation du métal qui tapisse le cylindre. Le régime stationnaire atteint est donc proche de l'équilibre thermodynamique. A haute température, on introduit un gaz tampon (Argon) dans le four pour éviter le dépôt métallique sur les fenêtres. La quantité introduite est cependant suffisamment basse pour pouvoir négliger les relaxations par collision des dipôles atomiques pendant toute la durée de l'excitation.



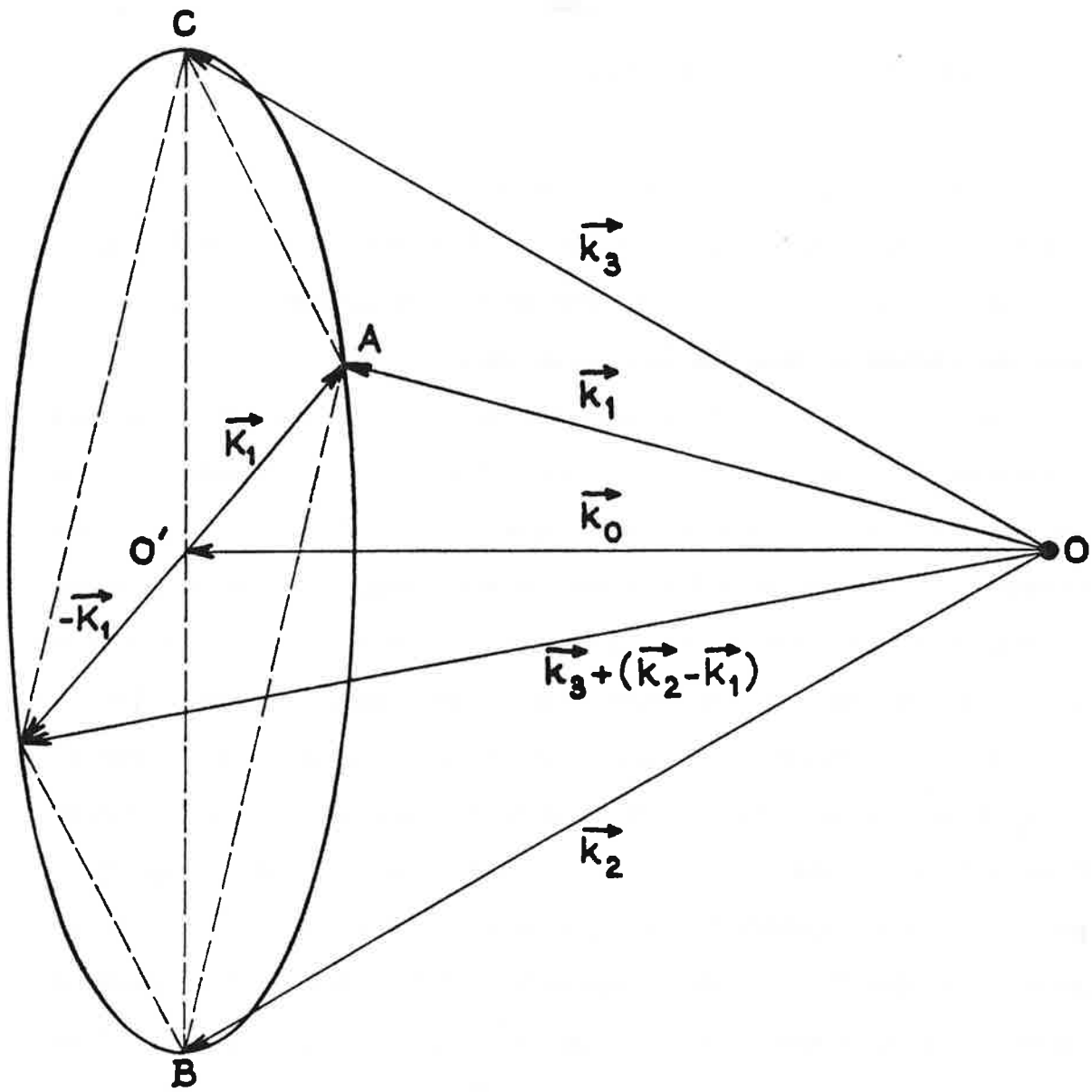


FIGURE III- 4: Configuration Boxcars.

d)- CONFIGURATION D'EXCITATION

Soumis à ces champs, l'échantillon ne peut émettre de signal que dans la direction où se réalise l'accord de phase. Pour détecter le signal dans la direction  $\vec{k}_3 + (\vec{k}_2 - \vec{k}_1)$  nous devons disposer géométriquement nos faisceaux de sorte que l'accord de phase  $\vec{k}_3 = |\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1|$  se réalise.

Une possibilité est de choisir  $\vec{k}_3 = \vec{k}_1$ . L'accord de phase se fait automatiquement dans la direction  $\vec{k}_2$ . Cependant cette configuration coplanaire pose un problème pour la sélection du signal. En effet le signal est émis dans la direction du faisceau 2 qui est intense, de même longueur d'onde et de même polarisation que lui. On a donc choisi une configuration géométrique à trois dimensions dite "Boxcars" qui permet une isolation spatiale du signal [46,47].

Cette configuration est construite de la façon suivante. On ramène  $\vec{k}_2$  et  $\vec{k}_3$  à une même origine O (Fig. III-4). On définit le point O' comme l'extrémité du vecteur  $\vec{k}_0 = (\vec{k}_2 + \vec{k}_3)/2$ . Soit le cercle de centre O' qui passe par les extrémités (diamétralement opposés) des vecteurs  $\vec{k}_2$  et  $\vec{k}_3$ . Tous les vecteurs d'origine O et de même longueur  $k = |\vec{k}_2| = |\vec{k}_3|$  ont leurs extrémités situées sur le cercle. Soit un point quelconque sur le cercle. Il définit l'extrémité du vecteur  $\vec{k}_1$  qu'on écrit :  $\vec{k}_1 = \vec{k}_0 + \vec{K}_1$ . Le vecteur d'onde du signal s'écrit alors :

$$\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1 = \vec{k}_0 - \vec{K}_1 \quad \text{III-5}$$

Son extrémité se trouve donc sur le cercle, diamétralement opposée à celle de  $\vec{k}_1$ . Le vecteur  $\vec{k}_0 - \vec{K}_1$  satisfait la condition d'accord de phase. En résumé, pour satisfaire la condition d'accord de phase il suffit de disposer dans un plan perpendiculaire à leur direction de propagation les extrémités A, B, C,

des vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$ ,  $\vec{k}_2$ ,  $\vec{k}_3$  de façon que ABC forment un triangle rectangle en A . L'extrémité du vecteur d'onde du signal forme le quatrième sommet du rectangle (Fig.III- 4).

#### e)- SELECTION ANGULAIRE ET TEMPORELLE DU SIGNAL

On effectue dans un premier temps une sélection spatiale en utilisant la différence de direction de propagation entre impulsions (Fig. III- 1).

L'angle entre les différents faisceaux dans le four est typiquement de l'ordre de 20 mrd. A la sortie du four les impulsions traversent une lentille convergente de distance focale  $f = 30$  cm. Dans le plan focal de cette lentille les impulsions sont séparées d'environ 6 mm et le diamètre des faisceaux, limité par diffraction, est d'environ 60  $\mu\text{m}$ . Un trou d'épingle placé sur le trajet du signal permet d'éliminer les 3 impulsions excitatrices. Néanmoins cette élimination n'est totalement efficace que pour l'impulsion sonde qui est de faible intensité. Pour les deux premières impulsions qui sont intenses, un fort résidu subsiste. On utilise alors un autre procédé d'élimination en mettant à profit le retard qui existe entre le signal et ces deux impulsions.

On place un obturateur électro-optique sur le trajet des faisceaux (Fig.III-1). Le dispositif consiste en une cellule de Pockels placée entre deux polariseurs croisés. La cellule de Pockels est formée d'un cristal uniaxe (KDP). En l'absence de champ électrique appliqué, on oriente l'axe optique suivant la direction de propagation moyenne des faisceaux lasers. Les vibrations lumineuses se propagent alors sans changement de polarisation (cristal équivalent à un milieu isotrope) et sont arrêtées par le deuxième polariseur. Le coefficient d'extinction est de l'ordre de  $10^3$  dans nos expériences. Quand on applique une haute tension, le milieu devient bi-axe ,

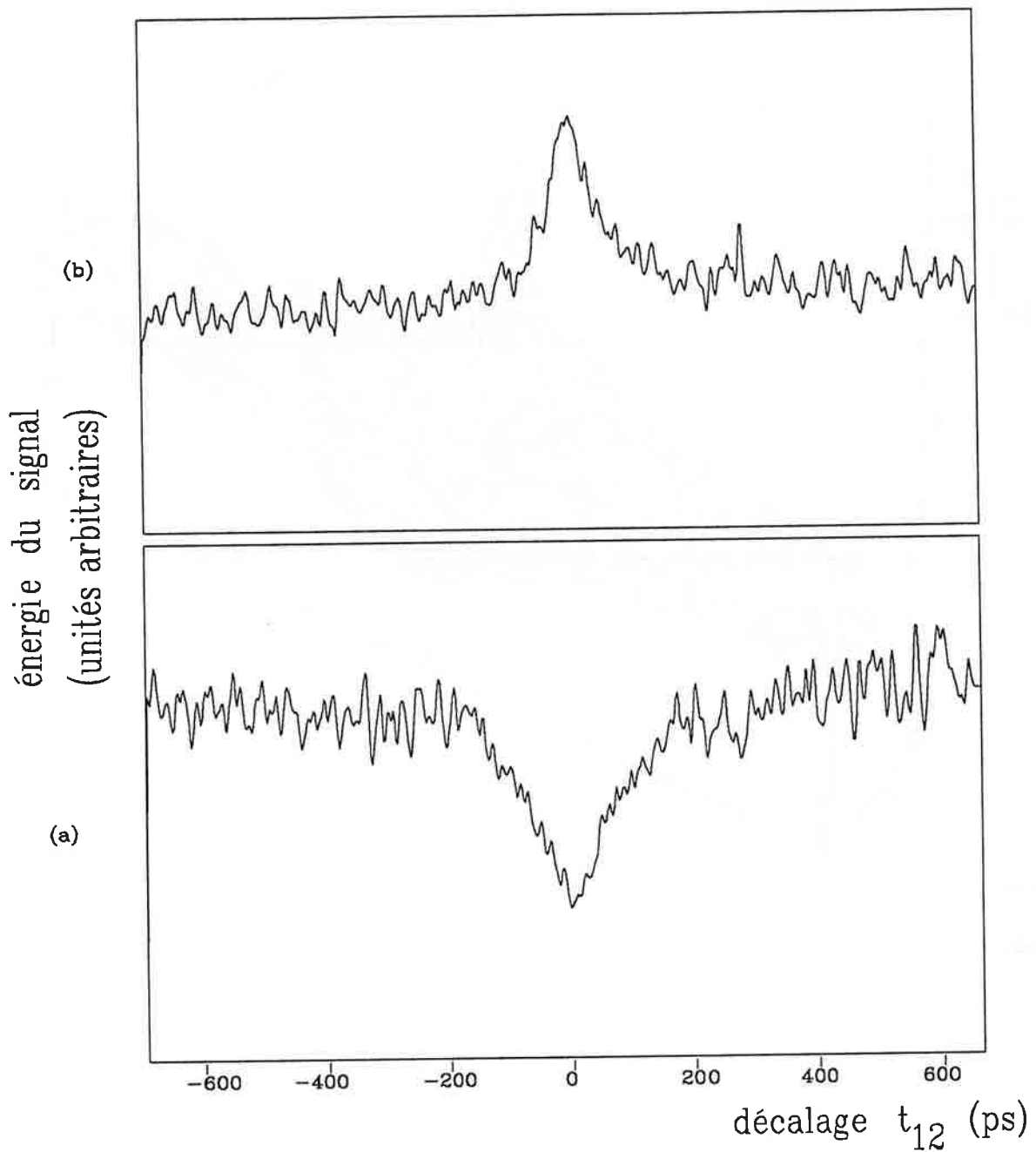
une composante parallèle au deuxième polariseur apparait qui est transmise.

Les impulsions de haute tension sont obtenues grâce à un commutateur de haute tension (CHT). Il est constitué d'une chaîne de transistors fonctionnant en régime d'avalanche que déclenche un signal délivré par une photodiode. Une ligne à retard électronique placée entre la photodiode et le commutateur permet d'ajuster l'instant d'ouverture du commutateur. En ajustant ce retard et en appliquant une tension de 4400 V pour laquelle le cristal se comporte comme une lame demi-onde, on élimine aisément les résidus des deux premières impulsions. Seul le signal passe sans être arrêté. Le temps de montée de l'obturateur entier (Pockels + CHT) est d'environ 5 ns.

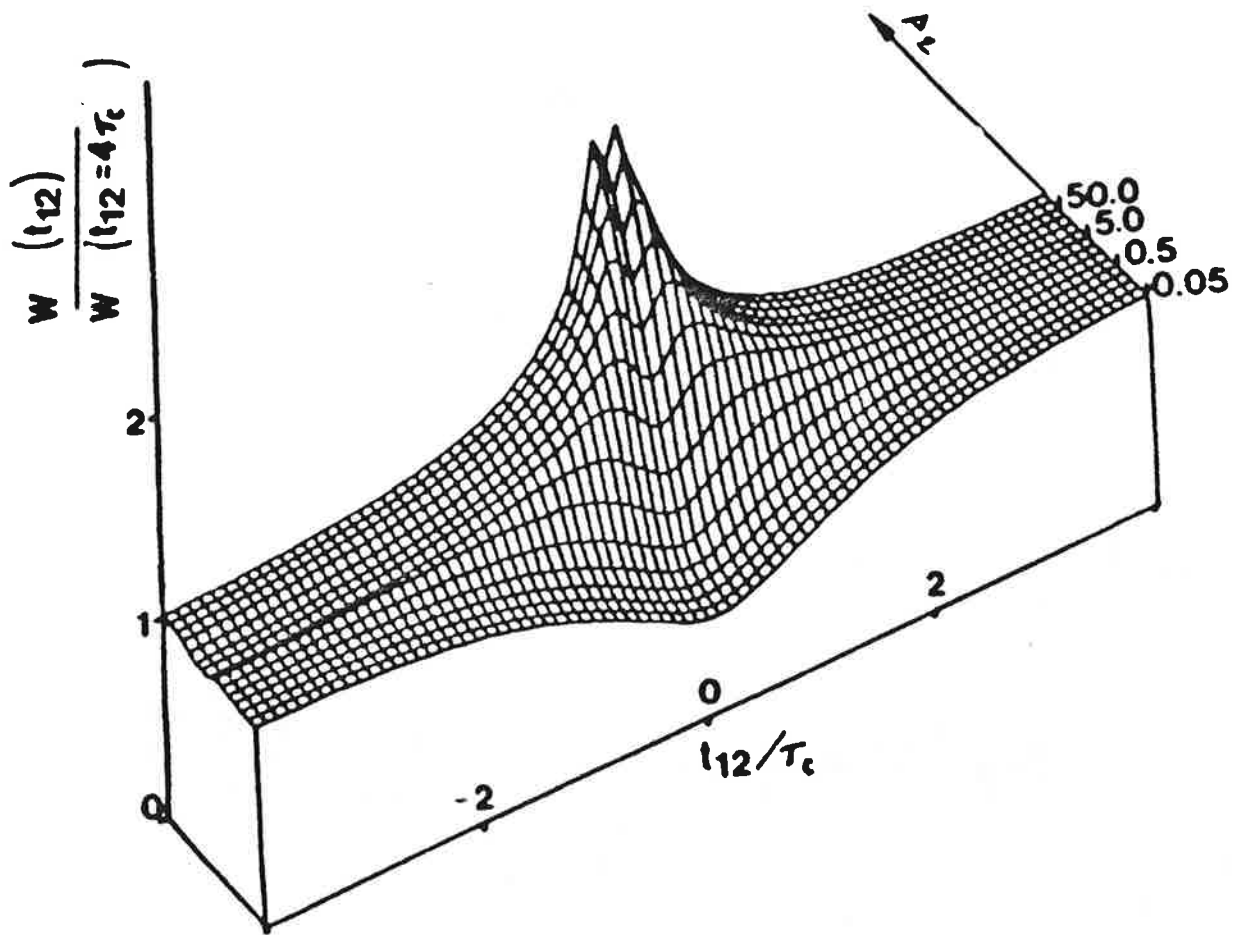
#### f)- ACQUISITION

Le signal est détecté par un photomultiplicateur rapide à 14 étages (modèle RTC 2254 B). La sortie du P.M est reliée à un intégrateur à porte (modèle Stanford SRS 250) permettant une mesure tir à tir du signal. Le déclenchement de cet intégrateur est assuré par une photodiode rapide éclairée par une fraction du faisceau laser de pompe Nd-YAG. Les impulsions excitatrices et le signal peuvent être visualisés grâce à un oscilloscope rapide (TEKTRONIX 7104) relié à la sortie du photomultiplicateur. Cette visualisation s'avère nécessaire pour optimiser l'amplitude du signal et affiner le réglage de l'obturateur électro-optique.

La valeur du signal numérisée est alors acquise par un micro-ordinateur (IBM PC XT). On acquiert simultanément la position du chariot déterminant le délai  $t_{12}$  entre les deux premières impulsions. Le nombre de mesures sur lequel on moyenne le signal est de l'ordre de 30 pour chaque valeur du retard  $t_{12}$ .



**FIGURE III-5:** Courbes expérimentales de l'énergie du signal émis  $\langle W \rangle$  en fonction du décalage  $t_{12}$  entre impulsions de pompe. La courbe (a) correspond au cas où  $s_1 = 95$  (champ 1 fort) et  $s_2 = 0.06$  (champ 2 faible). La courbe (b) correspond au cas où  $s_1 = 95$  et  $s_2 = 85$  (les deux champs sont forts).  $\tau_c$  vaut ici 70 ps.



(V. Finkelstein; P. R. Berman)  
 PHYS. REV. A, Vol. 41, numéro 1, Juin 1990, P. 6193

FIGURE III- 6: Courbes théoriques montrant l'évolution de l'énergie du signal émis avec le décalage  $t_{12}$  et la puissance du champ 2. On a  $s_1 = 500$ ;  $0.05 < s_2 < 170$ . Ces courbes ont été obtenus pour une fonction  $\alpha(t, \tau)$  tel que  $\int \alpha(t, \tau) dt = e^{-(|\tau|/\tau_c)}$ .

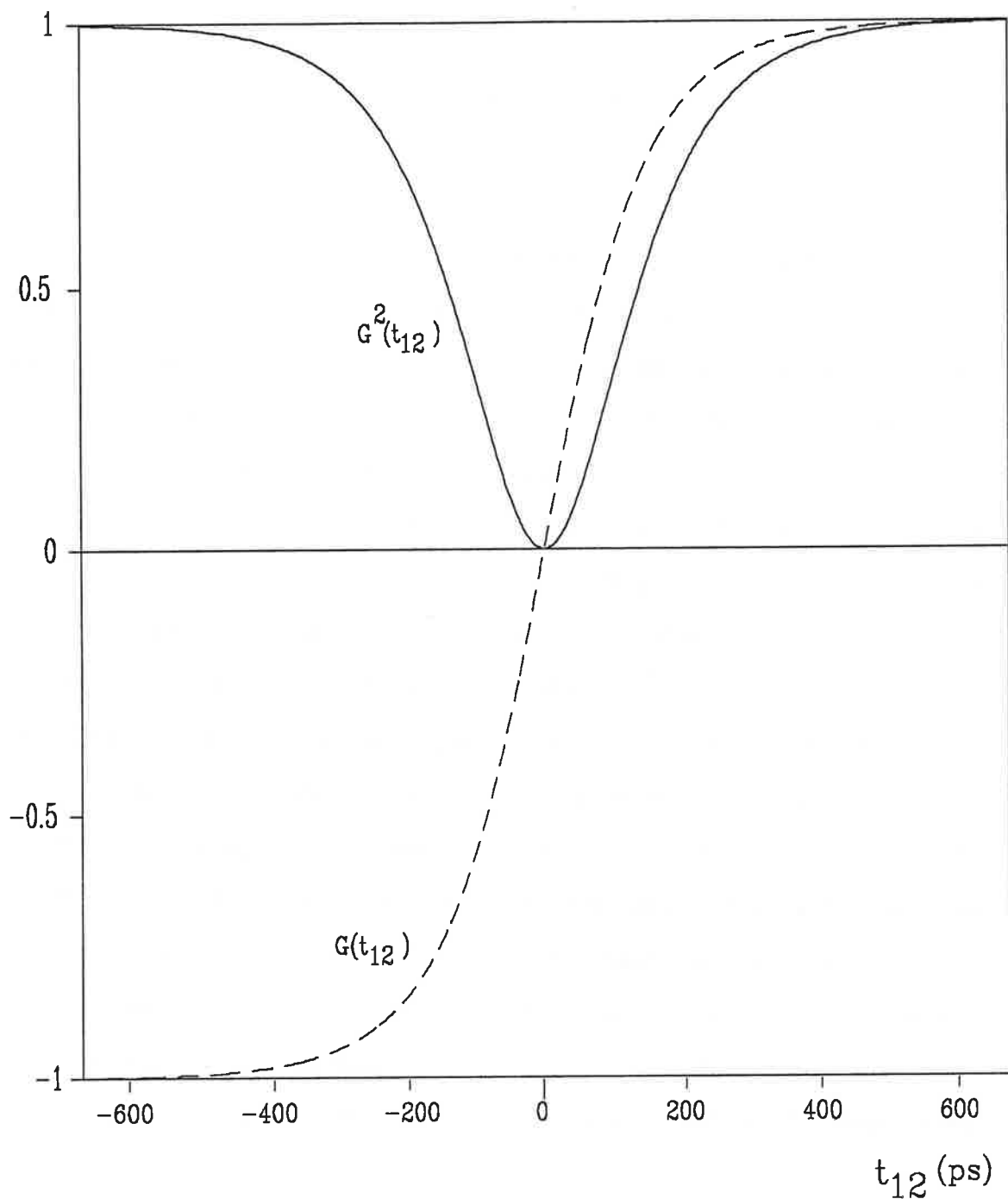
### 3)- Résultats expérimentaux et discussion

Les courbes de la figure III-5 représentent l'énergie du signal émis en fonction du décalage  $t_{12}$ . Les paramètres de saturation  $s_i = T^{(i)}/\tau_L$  portés sont  $s_1 = 95$  et  $s_2 = 0.06$  pour (a) et  $s_1 = 95$  et  $s_2 = 85$  pour (b). Le temps de cohérence des impulsions est  $\tau_c = 70$  ps. Le régime de champ fort ( $s_1 \gg 1$ ) est atteint pour une énergie de 6.7 micro-joule par impulsion. La largeur Doppler est  $\Delta_D = 4.3 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ . Ces résultats peuvent être confrontés aux prévisions théoriques [18, 19]. La figure III-6, représente la dépendance du signal avec d'une part  $t_{12}$  et d'autre part la puissance du champ 2 (le moins intense). Quand ce champ est faible, le comportement prévu pour le signal correspond bien à celui obtenu par l'expérience : il consiste en un creux se détachant d'un fond constant, la demi-largeur à mi-profondeur est égale au temps de cohérence  $\tau_c$ , la valeur du minimum du signal est moitié de celle du fond. Quand le champ 2 est fort, la forme du signal s'inverse pour donner un pic dont la largeur est sensiblement la même qu'en champ faible. La théorie prévoit la présence au milieu du pic d'une structure très étroite dont la largeur est une fonction décroissante de la puissance des champs. Son observation expérimentale a été impossible à réaliser : cette structure étant peu marquée, elle se trouve "noyée" dans le bruit expérimental.

## III- INTERPRETATION

### 1)- Cadre de l'interprétation

On se propose d'interpréter la variation du signal en fonction de  $t_{12}$ , pour différentes valeurs de  $s_2$ , en termes de corrélations entre atomes, ainsi



**FIGURE III-7:** Allure des fonctions  $G(t_{12})$  et  $G^2(t_{12})$ . Les courbes représentées ont été obtenues pour une fonction de corrélation  $g(\tau)$  égale à  $1 / \text{Ch}(\pi\tau / 2\tau_c)$  avec  $\tau_c = 150$  ps.



que le suggère l'expression du signal obtenue au paragraphe II du chapitre III. Il est montré dans la référence [18] que le signal provient pour l'essentiel de la corrélation entre atomes de même vitesse mais situés en des points différents de l'échantillon. C'est en effet le terme  $w_1$  défini par l'équation II-18 qui apporte au signal la contribution dominante. C'est donc l'évolution de cette corrélation spatiale sous l'effet des deux impulsions excitatrices qu'il nous faut analyser.

On s'appuie pour cela sur un autre résultat établi dans la référence [18]: l'excitation du système par deux impulsions corrélées décalées dans le temps est équivalente à son excitation par deux impulsions synchrones dont la fréquence centrale est décalée de :

$$\chi_{\text{sup}} = G(t_{12}) \frac{\sin \vec{K} \cdot \vec{r}}{\left( T^{(1)} T^{(2)} \right)^{1/2}} \quad \text{III-6}$$

avec

$$G(t_{12}) = \int_0^{t_{12}} g(\tau) \frac{d\tau}{\tau_c} \quad \text{III-7}$$

$$g(\tau) = \left( \frac{\int \alpha_i(t, \tau) dt}{\int \alpha_i(t, 0) dt} \right) \quad \text{III-8}$$

$g(\tau)$  est appelé fonction d'autocorrélation du champ. L'allure de la fonction  $G(t_{12})$  est représenté sur la figure III-7. Le décalage de fréquence introduit un déphasage supplémentaire (analogue au déphasage Doppler) entre des atomes situés à des points différents de l'échantillon, car  $\chi_{\text{sup}}$  est fonction de la position  $\vec{r}$  (cf. III-6). La variation spatiale induite par le décalage temporel

s'ajoute à la structure de franges d'interférence qui module l'intensité de l'excitation par deux impulsions synchrones de vecteurs d'ondes différents. L'objectif de ce paragraphe est de déterminer l'évolution de la fonction de corrélation entre atomes situés en des points différents de l'échantillon lorsqu'ils sont soumis à une excitation chaotique mais dotée de cette double structure spatiale.

## 2)- Evolution du système dans la représentation de Bloch

L'interprétation que nous allons développer utilise la représentation de Bloch qui permet de décrire géométriquement l'évolution des systèmes à deux niveaux soumis à un rayonnement. Notre système est soumis à un champ dont la fréquence de Rabi s'écrit, quand les deux impulsions qui le constituent sont synchrones, sous la forme suivante

$$\chi(\vec{r},t) = \chi_1(t) \left( 1 + m e^{i\Phi} \right) \quad \text{III-9}$$

avec  $\Phi = \vec{K} \cdot \vec{r}$  III-10

On définit dans un repère  $( \vec{i}, \vec{j}, \vec{k} )$  le vecteur  $\vec{B}(\Phi,t)$  (vecteur de Bloch) dont les composantes sont :

$$\begin{cases} u = \rho_{01} + \rho_{10} \\ v = i(\rho_{10} - \rho_{01}) \\ w = n_{01} \end{cases} \quad \text{III-11}$$

L'évolution de ce vecteur est gouverné par l'équation suivante [2, 44]:

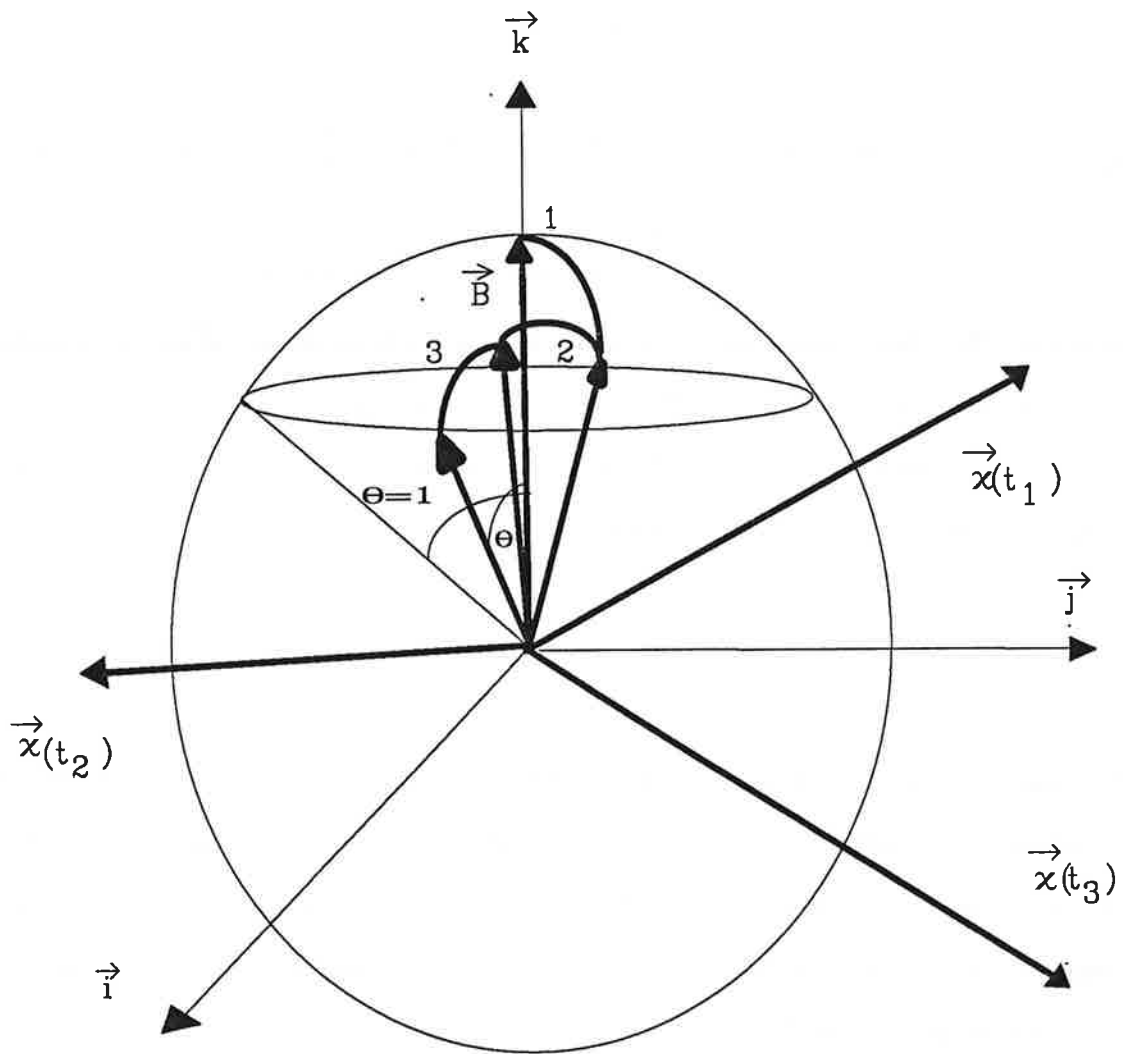


FIGURE III- 8: Evolution du vecteur de Bloch sous l'action du champ stochastique  $\chi(t)$ . On a représenté le vecteur de rotation  $\vec{\chi}$  aux instants  $t_1$ ,  $t_2$ ,  $t_3$  et les rotations associées (respectivement 1, 2, 3) de durée  $\tau_c$  chacune. L'angle  $\theta$  vaut 1 pour  $t = T = 1 / ((\chi^{(0)})^2 \tau_c)$

$$\frac{d\vec{B}}{dt} = (\vec{\chi} + \vec{\chi}_s) \wedge \vec{B} \quad \text{III-12}$$

$\vec{\chi}$  est le vecteur de composantes  $\left( -\frac{\chi + \chi^*}{2} ; i \frac{\chi^* - \chi}{2} ; 0 \right)$  et  $\vec{\chi}_s$  est le vecteur de composantes  $\left( 0 ; 0 ; \Delta + \chi_{\text{sup}}(\Phi) \right)$ .

Le vecteur de Bloch  $\vec{B}$  effectue un mouvement de précession autour de  $\vec{\chi} + \vec{\chi}_s$  (Fig.III- 8). Son mouvement résulte de la superposition d'un mouvement aléatoire dû au caractère stochastique du champ  $\vec{\chi}$  et d'un mouvement de précession autour de l'axe  $\vec{k}$  de vitesse angulaire constante  $(\Delta + \chi_{\text{sup}}(\Phi))$  . Dans les conditions III- 4 où on s'est placé on a :

$$(\Delta + \chi_{\text{sup}}(\Phi)) \ll \chi_1^{(0)} \quad \text{III-13}$$

Le mouvement de vitesse angulaire constante est donc lent par rapport au mouvement stochastique. Analysons maintenant ce mouvement stochastique effectué par le vecteur de Bloch. Nous admettons, tout au long de cette interprétation, que l'impulsion 1 est bien plus intense que l'impulsion 2, c'est à dire que  $m \ll 1$ .

Durant chaque intervalle de temps  $\tau_c$ , le vecteur  $\vec{\chi}$  est supposé constant en direction et en module (Fig. III-8) Le vecteur de Bloch tourne alors d'un angle  $\chi_1^{(0)}\tau_c$ . La condition  $\chi_1^{(0)}\tau_c \ll 1$  assure que la direction du vecteur de Bloch est peu changée pendant le temps de cohérence. Au cours du mouvement aléatoire de  $\vec{B}$  les différentes rotations d'amplitude  $\chi_1^{(0)}\tau_c$  se combinent dans une marche au hasard de pas élémentaire  $\tau_c$ , de sorte qu'au bout d'un temps  $t$  le vecteur de Bloch ayant effectué  $t/\tau_c$  rotations élémentaires s'écarte de sa position initiale d'un angle moyen :  $\chi_1^{(0)}\tau_c \sqrt{t/\tau_L}$  . On peut considérer que le système perd la mémoire de son état initial lorsque le vecteur de Bloch s'écarte de sa position primitive d'un angle de l'ordre de l'unité. Ceci se

produit au bout d'un temps  $T = 1/(\chi_1^{(0)})^2 \tau_c$ . On a alors les relations suivantes

$$\langle n_{01} \rangle \approx \langle \rho_{01} \rangle \approx \langle \rho_{10} \rangle \approx 0 \quad \text{III-14}$$

Remarquons que  $T$  s'identifie ( quand  $m \ll 1$ ) au temps d'évolution  $T^{(1)}$  du système soumis au seul champ 1 ( cf. III-1).

Expérimentalement, nous mesurons l'énergie diffractée dans l'ordre -1 du réseau. L'efficacité de diffraction dans cet ordre est déterminé par le coefficient de Fourier en  $e^{i(\Phi' - \Phi)}$  de la fonction de corrélation  $\langle n_{01}(\Phi, \Delta) n_{01}(\Phi', \Delta) \rangle$  (cf. chap.II, parag. III). Le mouvement d'un seul vecteur de Bloch ne peut nous renseigner sur la valeur de cette fonction. Son expression fait intervenir l'expression de deux vecteurs de Bloch, pris en des positions différentes  $\vec{r}$  et  $\vec{r}'$ . C'est cette dépendance que l'on va établir plus précisément dans ce qui suit.

### 3)- Expression du signal dans la représentation de Bloch

Considérons maintenant le mouvement relatif de  $\vec{B}(\Phi)$  et  $\vec{B}(\Phi')$ . Initialement les vecteurs de Bloch associés à tous les atomes sont alignés sur l'axe  $\vec{k}$ . On cherche à déterminer comment, sous l'effet de l'excitation stochastique, les vecteurs de Bloch associés aux différents atomes s'écartent peu à peu les uns des autres. En  $t_{12} = 0$ , La fréquence de Rabi au point  $\vec{r}$  s'écrit :

$$\chi(t) = \chi_1(t) a(\Phi) e^{i\varphi(\Phi)} \quad \text{III-15}$$

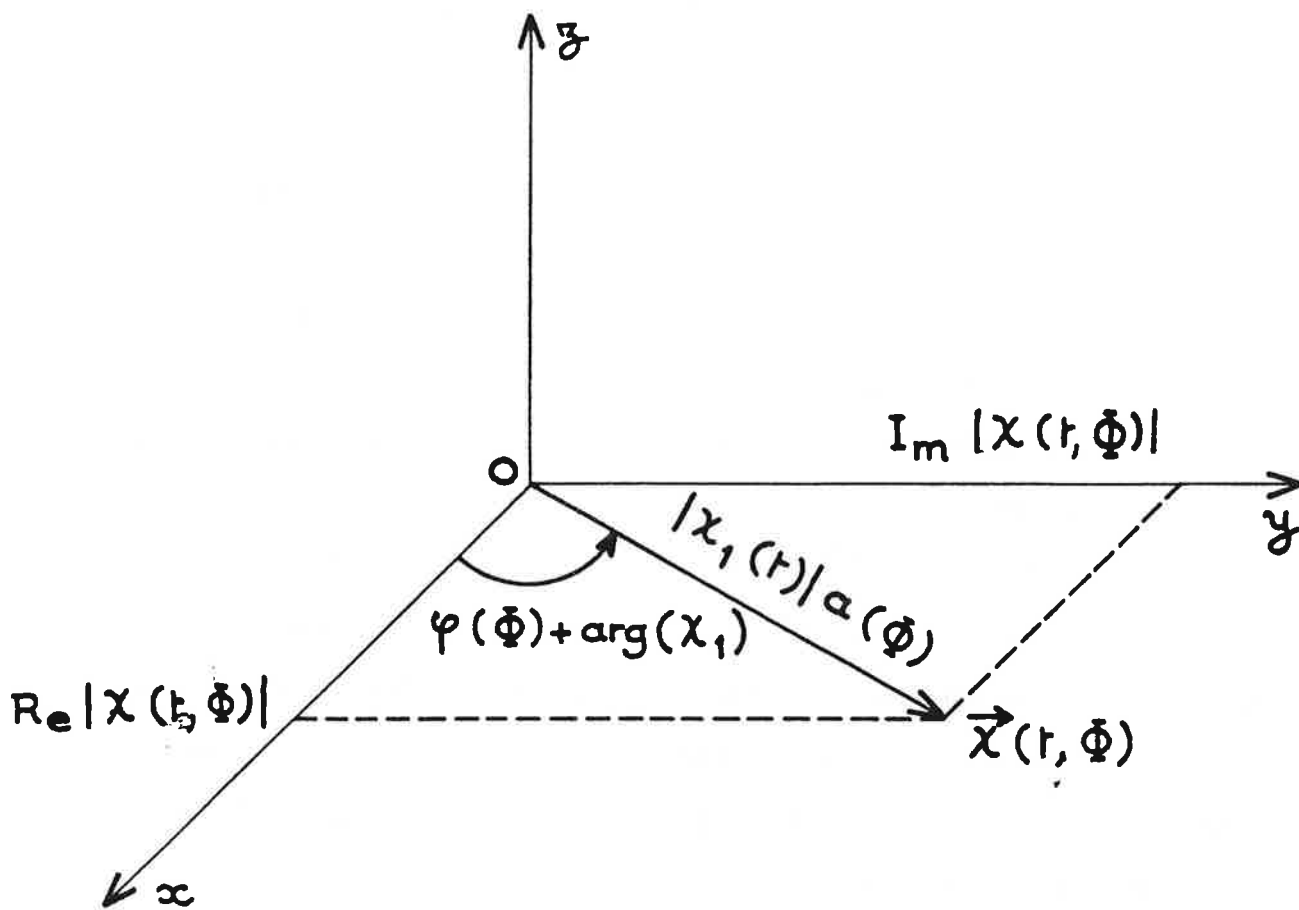


FIGURE III- 9 : Représentation du vecteur  $\vec{\chi}(t, \Phi)$  dans l'espace de Bloch.

$$\text{où } a(\Phi) = |1 + e^{i\Phi}| \quad ; \quad \text{tg } \varphi(\Phi) = \frac{m \sin \Phi}{1 + m^2 + 2m \cos \Phi} \quad \text{III-16}$$

Dans l'espace de Bloch, le vecteur rotation associé  $\vec{\chi}$  a pour module  $|\chi_1(t) a(\Phi)|$ . Les parties réelles et imaginaire de  $\chi(t)$  définissent ses composantes dans le plan  $(\vec{i}, \vec{j})$  (Fig. III- 9). Ainsi pour deux points  $\vec{r}$  et  $\vec{r}'$  de l'échantillon, les axes de rotations dans l'espace de Bloch diffèrent à la fois en module (à cause du facteur  $a(\Phi)$  dans l'expression de  $\chi(t)$ ) et en direction (à cause du facteur de phase  $e^{i\varphi(\Phi)}$ ). On peut montrer que les mouvements d'un vecteur de Bloch induits par des fréquences de Rabi  $\chi_1(t) a(\Phi) e^{i\varphi(\Phi)}$  et  $\chi_1(t) a(\Phi) e^{i\varphi(\Phi')}$  diffèrent finalement par une rotation d'angle  $(\varphi(\Phi)-\varphi(\Phi'))$  autour de l'axe vertical  $\vec{k}$ . Comme  $m \ll 1$ , cette rotation peut être négligée. On admettra dans la suite que les vecteurs rotation associés aux points  $\vec{r}$  et  $\vec{r}'$  diffèrent donc seulement en module. On négligera la différence de leurs directions.

D'après ce qui a été montré au 2), quand  $t > T$ , tous les atomes ont perdu la mémoire de leur état initial de sorte que les trois axes du référentiel sont équivalents pour eux. Les produits des projections de ces vecteurs sur chacun des trois axes sont égaux en moyenne, c'est à dire que l'on a :

$$\begin{aligned} \langle n_{01}(\Phi) n_{01}(\Phi') \rangle &= \langle u(\Phi) u(\Phi') \rangle = \langle v(\Phi) v(\Phi') \rangle \\ &= \frac{1}{3} \langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle \end{aligned} \quad \text{III-17}$$

En  $t_{12} \neq 0$  une composante  $\chi_{\text{sup}}(\Phi) \vec{k}$  s'ajoute au vecteur rotation obtenu pour  $t_{12} = 0$ . Il est montré dans la référence [18] que l'égalité III- 17 demeure toujours vérifiée quand  $m \ll 1$ . En tenant compte de II-18 et III- 17 le signal s'exprime alors sous la forme suivante:

$$\langle W \rangle \approx \frac{1}{3} \int_{-\pi}^{\pi} d\Phi \int_{-\pi}^{\pi} d\Phi' \langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle e^{i(\Phi - \Phi')} \quad \text{III-18}$$

L'étude du mouvement relatif entre  $\vec{B}(\Phi)$  et  $\vec{B}(\Phi')$  nous permettra de déterminer comment évolue la décorrélation entre ces deux vecteurs. Dans le paragraphe qui suit nous effectuerons cette étude en fonction des paramètres de l'expérience  $t_{12}$  et  $s_2$ .

#### 4)- Expression du déphasage entre deux vecteurs de Bloch

Pour étudier le mouvement relatif de ces vecteurs, il convient de se placer dans le repère mobile associé à l'un des vecteurs (on choisira  $\vec{B}(\Phi)$ ). Le mouvement de  $\vec{B}(\Phi')$  est décrit dans ce repère par l'équation :

$$\left( \frac{d\vec{B}(\Phi')}{dt} \right)_{\text{Repère Mobile}} = \left[ \vec{\chi}_1(t) [a(\Phi) - a(\Phi')] + \vec{\chi}_s(\Phi) - \vec{\chi}_s(\Phi') \right] \wedge \vec{B}(\Phi') \quad \text{II-19}$$

avec 
$$\vec{\chi}_1(t) = \left( -\frac{\chi_1 + \chi_1^*}{2} ; i \frac{\chi_1 - \chi_1^*}{2} ; 0 \right) \quad \text{III- 20}$$

Pour commencer, ignorons le mouvement de précession additionnel. Les axes autour desquels précessent  $\vec{B}(\Phi)$  et  $\vec{B}(\Phi')$  sont confondus. C'est la différence des vitesses de rotation qui est à l'origine de la divergence des trajectoires et de la décorrélation entre les vecteurs. D'après ce qui a été dit dans le III-2) le vecteur  $\vec{B}(\Phi)$ , et par conséquent le repère mobile, changent d'orientation de façon significative au bout d'un temps T. Pendant cette durée le vecteur  $\vec{B}(\Phi')$  s'est éloigné de  $\vec{B}(\Phi)$  d'un angle



$$\chi_1^{(0)} |a(\Phi) - a(\Phi')| \sqrt{\tau_c T} \quad \text{III-21}$$

Cet angle est petit tant que  $m \ll 1$ . Au cours des changements d'orientation successifs du repère mobile, ces rotations se combinent de sorte qu'au bout de  $\tau_L$ , l'angle entre les deux vecteurs de Bloch vaut :

$$\theta = \chi_1^{(0)} |a(\Phi) - a(\Phi')| \sqrt{\tau_c \tau_L} \quad \text{III-22}$$

La décroissance de la corrélation entre les deux vecteurs  $\vec{B}(\Phi)$  et  $\vec{B}(\Phi')$  en fonction de l'angle moyen  $\theta$  peut s'écrire sous la forme [18]:

$$\langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle_{\vec{\chi}} = e^{-\frac{2}{3} \theta^2} = e^{-\frac{2}{3} s_2 (\cos \Phi - \cos \Phi')^2} \quad \text{III-23}$$

Intéressons nous maintenant à ce qui se passe en présence de la rotation supplémentaire. On a vu dans le III-2) que ce mouvement avait une influence négligeable sur l'évolution de ces vecteurs. Néanmoins, sa contribution à leur évolution relative ne l'est pas. En effet, d'après le paragraphe III-2), pendant le temps  $T$  où le référentiel de  $\vec{B}(\Phi)$  reste immobile,  $\vec{B}(\Phi')$  s'éloigne de  $\vec{B}(\Phi)$ , sous l'effet seul de cette rotation supplémentaire, d'un angle :

$$|\chi_{\text{sup}}(\Phi) - \chi_{\text{sup}}(\Phi')| T \quad \text{III-24}$$

et au bout de  $\tau_L$  d'un angle :

$$|\chi_{\text{sup}}(\Phi) - \chi_{\text{sup}}(\Phi')| T \sqrt{\tau_L / T} = G(t_{12}) \sqrt{s_2} |\sin(\Phi) - \sin(\Phi')| \quad \text{III-25}$$

La décorrélation des vecteurs de Bloch dû au seul déphasage  $\chi_{\text{sup}}$  donne :

$$\langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle_{\vec{\chi}_s} = e^{-\frac{2}{3} s_2} G^2 (\sin(\Phi) - \sin(\Phi'))^2 \quad \text{III-26}$$

Les deux mouvements relatifs des vecteurs de Bloch - l'un résultant de l'excitation par deux impulsions synchrones, l'autre produit par la précession additionnelle de vitesse angulaire  $\chi_{\text{sup}}$  - se combinent comme des processus indépendants. L'évolution de la fonction de corrélation des vecteurs de Bloch s'écrit donc finalement :

$$\langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle = \langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle_{\vec{\chi}} \langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle_{\vec{\chi}_s} \quad \text{III-27}$$

où encore d'après III-23 et III-26 :

$$\langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle = e^{\frac{2}{3} s_2} \left[ (\cos\Phi - \cos\Phi')^2 + G^2(t_{12}) (\sin\Phi - \sin\Phi')^2 \right] \quad \text{III-28}$$

La décorrélation est complète dès que :

$$s_2 \left[ (\cos\Phi - \cos\Phi')^2 + G^2(t_{12}) (\sin\Phi - \sin\Phi')^2 \right] > 1$$

III-29

Cette expression reflète bien la structure spatiale de l'excitation selon que  $t_{12} = 0$  ou  $|t_{12}| \gg \tau_c$ . En  $t_{12} = 0$ ,  $G^2 = 0$  et l'expression III-29 se réduit à  $s_2 (\cos\Phi - \cos\Phi')^2$ . On reconnaît dans  $\cos\Phi$  et  $\cos\Phi'$  l'excitation en  $\vec{r}$  et  $\vec{r}'$  des atomes par des franges d'interférence lumineuse localisées dans l'espace. En revanche, lorsque  $|t_{12}| \gg \tau_c$ , il ne se forme plus de franges

d'interférences lumineuses dans l'échantillon et ceci se traduit dans l'expression III-29 qui se réduit à  $s_2 (1 - \cos(\Phi - \Phi'))$  puisque  $G^2 = 1$ . La structure de l'excitation ne dépend plus que des positions relatives des atomes.

En posant  $\Phi' = \Phi + \Delta\Phi$ , on voit que la fonction de corrélation  $\langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle$  est une fonction périodique de  $\Delta\Phi$ . Elle admet donc un développement de Fourier en  $e^{im\Delta\Phi}$ . L'expression III-18 indique que seul le terme en  $e^{i\Delta\Phi}$  contribue au signal. Nous déterminons le coefficient de Fourier correspondant dans les deux cas extrêmes des champs faibles et des champs forts.

#### 5)- Cas où le champ 2 est faible ( $s_2 \ll 1$ )

Le développement perturbatif de III-28 donne :

$$\langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi') \rangle \approx 1 - \frac{2}{3} s_2 \left[ (\cos\Phi - \cos\Phi')^2 + G^2(t_{12}) (\sin\Phi - \sin\Phi')^2 \right]$$

III-30

Le coefficient de Fourier en  $e^{i\Delta\Phi}$ , responsable du signal, vaut  $\frac{2}{3} s_2 (1 + G^2)$ .

Substituant cette expression dans III-18 on obtient pour le signal :

$$\langle W \rangle = \frac{2}{3} s_2 (1 + G^2(t_{12}))$$

III-31

Le signal suit, à partir de sa valeur en  $t_{12} = 0$ , les variations de la fonction  $G^2$  avec  $t_{12}$ . C'est la forme de cette fonction qui est ainsi reproduite lorsque on effectue la mesure de l'énergie. La valeur du signal sur les ailes est double de celle obtenue en  $t_{12} = 0$ .

On a représenté sur les figures III-10-a) et III-10-b) la corrélation

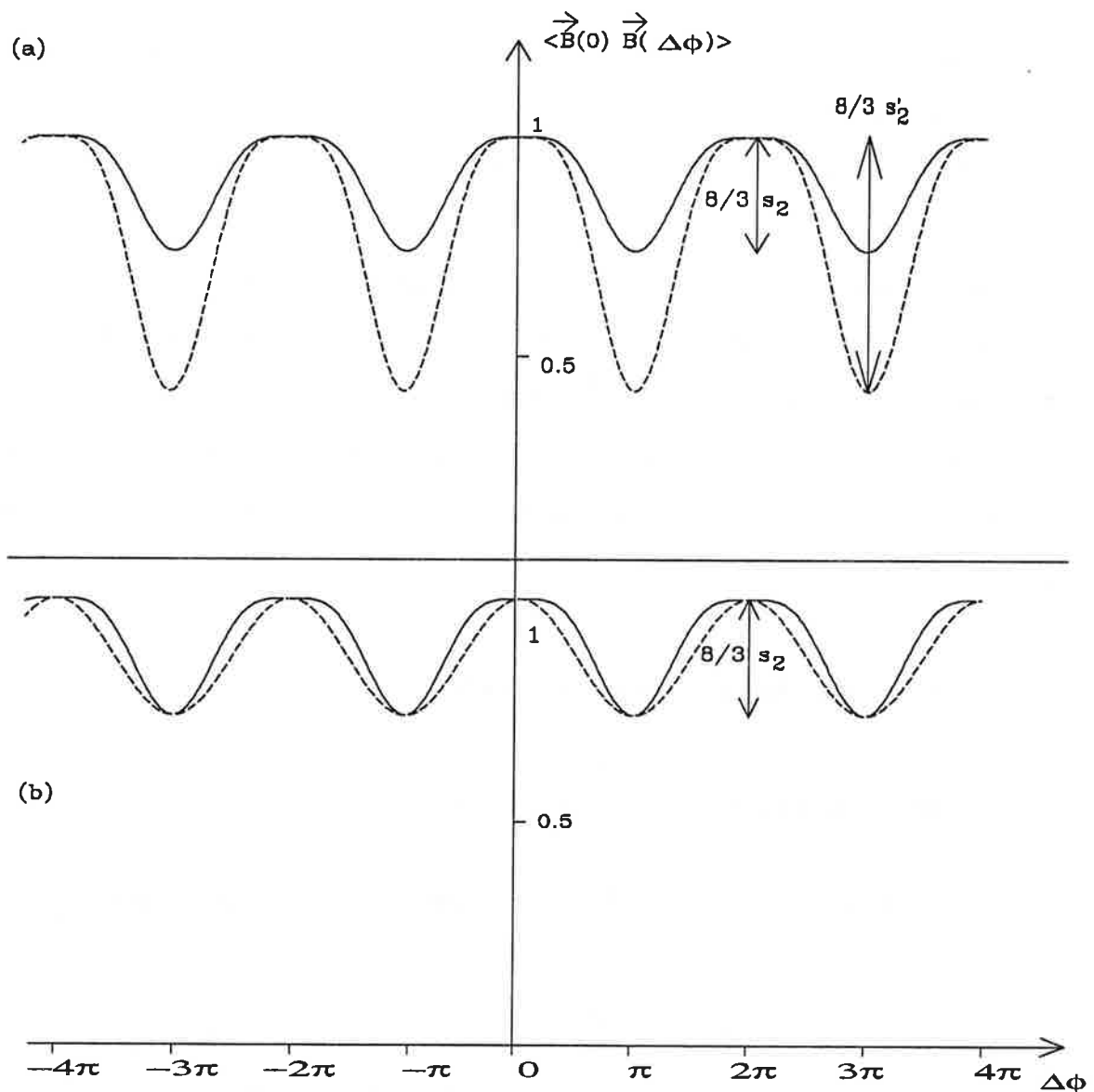


FIGURE III-10: Régime de champ faible.

- (a): Dépendance de la fonction de corrélation  $\langle \vec{B}(0) \vec{B}(\Delta\Phi) \rangle$  en fonction de  $\Delta\Phi$  pour  $t_{12} = 0$  et pour deux valeurs du paramètre de saturation  $s_2 = 0.1$  et  $s_2 = 0.15 > s_2$ .
- (b): Dépendance de la fonction de corrélation  $\langle \vec{B}(0) \vec{B}(\Delta\Phi) \rangle$  en fonction de  $\Delta\Phi$  pour une valeur  $s_2 = 0.1$  du paramètre de saturation. Les deux courbes représentent les cas  $t_{12} = 0$  (courbe en traits pleins) et  $t_{12} > \tau_c$  (courbe en pointillés).

$\langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi + \Delta\Phi) \rangle$ , en fonction de  $\Delta\Phi$ , pour  $\Phi = 0$  et pour différentes valeurs de  $t_{12}$  et  $s_2$ . Une augmentation de  $s_2$  produit un creusement de plus en plus marqué de la structure représentée. Le signal relié à la profondeur de cette structure augmente. Cette situation change quand il commence à y avoir des régions où  $\langle \vec{B}(\Phi) \cdot \vec{B}(\Phi + \Delta\Phi) \rangle \approx 0$ . Cela coïncide avec un changement de régime d'un champ faible à un champ fort, pour lequel le développement perturbatif n'est plus valable.

#### 6)- Cas où le champ 2 est fort

Dans l'équation III-27 l'argument de l'exponentielle s'écrit:

$$8/3 s_2 \sin^2((\Phi - \Phi')/2) [ \sin^2((\Phi + \Phi')/2) + G^2(t_{12}) \cos^2((\Phi + \Phi')/2) ]$$

III-32

La contribution dominante au signal provient, d'après l'équation III-18, des régions où l'argument de l'exponentielle est beaucoup plus petit que l'unité. Dès que  $G^2(t_{12}) s_2 \geq 1$ , cette condition est seulement satisfaite par la région telle que

$$|\Phi - \Phi' + 2 k \pi| \ll 1$$

III-33

L'équation III-18 se met alors sous la forme :

$$\langle W \rangle \approx \frac{1}{3} \int_{-\pi}^{\pi} dx \int_{-\infty}^{+\infty} dy e^{[-\frac{2}{3} s_2 y^2 (\sin^2 x + G^2 \sin^2 y)]}$$

III-34

qui se réduit à :

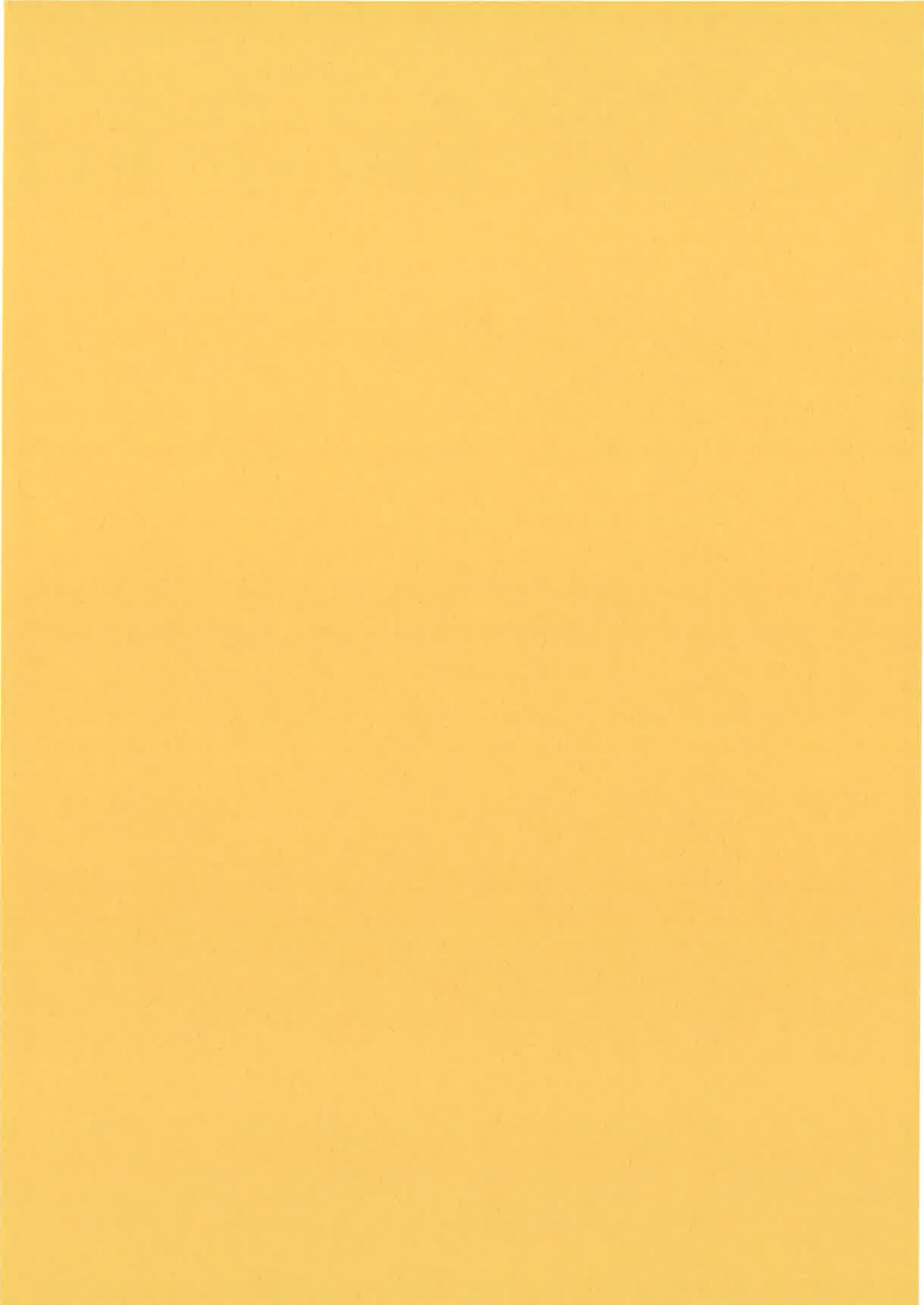
$$\langle W \rangle \propto (\pi / 6s_2)^{1/2} \int_{-\pi}^{\pi} dx \frac{1}{[\sin^2 x + G^2(t_{12}) \cos^2 x]^{1/2}} \quad \text{III-35}$$

Sous cette forme l'expression du signal révèle ses propriétés d'évolution en fonction de la puissance du champ 2, caractérisée par le paramètre  $s_2$  et en fonction du retard  $t_{12}$  dont dépend le paramètre  $G^2$ . Le signal apparaît, dans cette région où  $G^2 s_2 > 1$ , comme une fonction décroissante de la puissance (variation en  $(1/s_2)^{1/2}$ ). En fonction du retard  $t_{12}$ , l'intensité du signal décroît depuis la région  $G^2 s_2 \approx 1$  jusqu'à la région où  $G^2 \approx 1$ . Dans la région où  $G^2 \ll 1$ , ce paramètre  $G^2$  est à peu près égal à  $t_{12}^2 / \tau_c^2$ . Donc, le domaine de décroissance de l'intensité du signal en fonction de  $t_{12}$  s'étend de la région  $|t_{12}| \approx \tau_c / \sqrt{s_2}$  à la région  $|t_{12}| \approx \tau_c$ . Au delà, l'intensité du signal est constante et l'équation III-35 se réduit à :

$$\langle W \rangle \propto 2 \pi (\pi / 6s_2)^{1/2} \quad \text{III-36}$$

La région  $|t_{12}| < \tau_c / \sqrt{s_2}$  n'est pas examinée dans cette brève discussion. C'est précisément celle où un calcul complet prévoit un "creux" dans la courbe de variation de l'intensité du signal en fonction de  $t_{12}$ .







CHAPITRE IV

EFFETS DE PUISSANCE DANS UN SYSTEME  
A TROIS NIVEAUX EN V

I- INTRODUCTION

Nous avons vu précédemment que l'interaction résonnante de deux champs intenses avec un système à deux niveaux conduisait à la présence d'une structure temporelle plus étroite que le temps de corrélation. Malheureusement, cette structure étant peu marquée, son observation expérimentale a été rendu impossible.

Dans ce chapitre, nous étendons ces études de puissance au cas où les deux impulsions de pompe ont des polarisations orthogonales (système en V). Des structures temporelles plus étroites que  $\tau_c$  apparaissent et sont cette fois plus marquée que dans le cas d'un système à deux niveaux. Leur observation a ainsi pu être réalisée. L'interprétation physique qui rend compte de ces structures est basée sur le phénomène de résonance noire, propre à un système à configuration V ou  $\Lambda$  dont les deux transitions sont excitées à résonance. Il existe alors une combinaison linéaire des deux états dégénérés de l'atome qui est insensible à l'excitation. Les études menées jusqu'alors ont porté sur des systèmes en  $\Lambda$  [48- 52]. Il a été montré que le pompage optique dans l'état noir conduit à une disparition de la fluorescence après que les atomes aient tous été piégés dans cet état [48, 49]. Quand les deux champs sont stochastiques, l'insensibilité de l'état noir à l'excitation

dépend fortement de la corrélation relative entre les deux champs [51, 52].

Deux situations sont étudiées dans le présent chapitre. La première correspond au cas où les intensités des champs sont très différentes. C'est l'énergie du signal qu'on détecte alors. La seconde situation est celle où les intensités des champs sont égales. C'est une corrélation d'amplitude entre le signal et la référence qu'on effectue. Ce dernier cas est particulièrement intéressant car le signal ( en fonction de  $t_{12}$  ) consiste en un pic étroit centré en  $t_{12}=0$  qui se détache d'un fond "noir". Nous montrons que, pour une disposition géométrique convenable des faisceaux, le signal ne peut être émis que par des atomes situés dans une région étroite autour de la position de retard nul : nous proposons ainsi une méthode qui permettrait de lier la position des atomes à un état interne déterminé. Nous discuterons les limites fixés à la résolution ultime qu'on peut obtenir, ainsi qu'une application possible de cette méthode : la détermination du profil de densité transverse d'un jet atomique.

## II- PHENOMENE DE RESONANCE NOIRE

Le champ composé de deux impulsions (stochastiques) de direction de polarisation donné par  $\vec{e}_1$  et  $\vec{e}_2$  orthogonales s'écrit :

$$\vec{E}(t) = \frac{\varepsilon_1(t)}{2} e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \vec{e}_1 + \frac{\varepsilon_2(t)}{2} e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \vec{e}_2 + \text{C.C.} \quad \text{IV-1}$$

avec  $\varepsilon_1(t-t_{12}) = \text{tg}\beta \varepsilon_2(t)$  IV-2

Ce champ excite à résonance une transition  $J=0 \rightarrow J=1$ . Le système atomique est alors équivalent à un système en  $V$  ( $|0\rangle$ ,  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$ ), où les mêmes notations

qu'au chapitre I sont utilisées.

Nous définissons 2 états  $|d\rangle$  (état noir) et  $|c\rangle$  (état brillant) combinaisons linéaires des états supérieurs  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  :

$$\begin{cases} |d\rangle = \cos\beta |1\rangle - \sin\beta |2\rangle \\ |c\rangle = \sin\beta |1\rangle + \cos\beta |2\rangle \end{cases} \quad \text{IV-3}$$

En tenant compte du mouvement de translation atomique l'équation de Schrödinger s'écrit :

$$i\hbar \left( \frac{\partial}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \right) \Psi = H \Psi \quad \text{IV-4}$$

où H est l'Hamiltonien total défini au chapitre I. Les amplitudes des états  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$ , s'écrivent respectivement comme  $a_1 e^{-i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})}$  et  $a_2 e^{-i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})}$  ; l'amplitude de  $|0\rangle$  est notée  $a_0$ . On obtient alors à partir de IV-4 et à l'approximation de l'onde tournante les équations suivantes :

$$\begin{aligned} i \dot{a}_0 &= -\frac{\chi_1}{2} a_1 - \frac{\chi_2}{2} a_2 \\ i \dot{a}_1 &= \Delta a_1 - \frac{\chi_1^*}{2} a_0 \\ i \dot{a}_2 &= \Delta a_2 - \frac{\chi_2^*}{2} a_0 \end{aligned} \quad \text{IV-5}$$

A partir de IV-3 et IV-5 il vient le système équivalent décrivant l'évolution des amplitudes  $a_0$ ,  $a_d$ ,  $a_c$  :

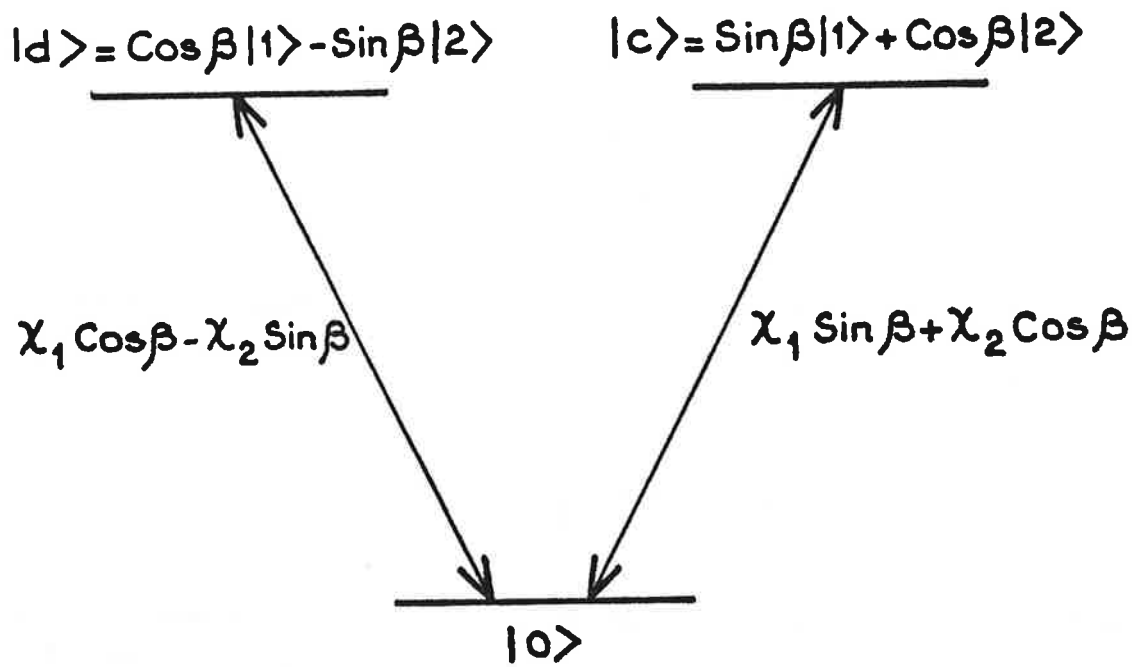


FIGURE IV-1: Configuration des états  $|0\rangle$ ,  $|c\rangle$ ,  $|d\rangle$ . On a  $\text{tg } \beta = \chi_1^{(0)}/\chi_2^{(0)}$

$$\begin{aligned}
 i \dot{a}_0 &= - \frac{(\chi_1 \cos\beta - \chi_2 \sin\beta)}{2} a_d - \frac{(\chi_1 \sin\beta + \chi_2 \cos\beta)}{2} a_c \\
 i \dot{a}_d &= \Delta a_d - \frac{(\chi_1^* \cos\beta - \chi_2^* \sin\beta)}{2} a_0 \\
 i \dot{a}_c &= \Delta a_c - \frac{(\chi_1^* \sin\beta + \chi_2^* \cos\beta)}{2} a_0
 \end{aligned}
 \tag{IV-6}$$

Dans la configuration formée par les états  $|0\rangle$ ,  $|c\rangle$  et  $|d\rangle$ , les transitions sont caractérisées par les fréquences de Rabi  $(\chi_1 \cos\beta - \chi_2 \sin\beta)$  (pour la transition  $|0\rangle \rightarrow |d\rangle$ ) et  $(\chi_1 \sin\beta + \chi_2 \cos\beta)$  (pour la transition  $|0\rangle \rightarrow |c\rangle$ ) (Fig.IV-1). D'après IV-2, la fréquence de Rabi associée à la transition  $|0\rangle \rightarrow |d\rangle$  s'écrit:

$$(\chi_1(t) - \chi_1(t-t_{12})) \cos\beta \tag{IV-7}$$

En  $t_{12} = 0$  cette fréquence de Rabi s'annule. L'état noir n'est plus sensible à l'illumination laser : les amplitudes de transition de  $|0\rangle \rightarrow |d\rangle$  sous l'action du champ 1 et du champ 2 interfèrent destructivement. Si initialement tous les atomes sont au niveau fondamental, l'état noir ne sera jamais peuplé. L'état brillant  $|c\rangle$  est alors fortement couplé à l'état fondamental. La force de couplage est égale à :

$$\left( \langle |\chi_1^* \sin\beta + \chi_2^* \cos\beta|^2 \rangle \right)^{1/2} = \left( \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}} \right)^{1/2} \tag{IV-8}$$

Si  $t_{12} \neq 0$  l'état noir est couplé à l'état fondamental par le laser et se peuple alors.

### III- EXPRESSION DES SIGNAUX DETECTES

#### 1)- Expression des signaux en fonction des populations des états noir et brillant

Les temps d'évolution du système sous l'action des impulsions 1 et 2 sont respectivement  $T^{(1)} = 1/\left(\chi_1^{(0)}\right)^2 \tau_c$  et  $T^{(2)} = 1/\left(\chi_2^{(0)}\right)^2 \tau_c$ , où  $\chi_1^{(0)}$  et  $\chi_2^{(0)}$  sont les fréquences quadratiques moyennes de Rabi déjà définies. Les paramètres de saturation respectifs sont  $s_1 = \tau_L/T^{(1)}$  et  $s_2 = \tau_L/T^{(2)}$ . Nous supposons que l'impulsion 2 réalise la condition de champ fort c'est à dire :

$$s_2 \gg 1. \quad \text{IV-9}$$

De plus les conditions suivantes sont vérifiées :

$$\tau_c, t_{12} \ll \Delta_D^{-1}, \tau_L, T^{(1)}, T^{(2)} \quad \text{IV-10}$$

Comme il a été vu au chapitre I, un réseau de Bragg à deux composantes s'inscrit dans les cohérences Zeeman du système. Quand on sonde par une troisième impulsion dont la polarisation est parallèle à celle de l'impulsion 1, un signal se construit à partir de  $\rho_{12}$ . Il est émis dans la direction  $(\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1)$ , où  $\vec{k}_3$  est le vecteur d'onde de l'impulsion sonde. L'expression du champ émis est (cf chapitre II, paragraphe III):

$$E_e \propto \int_{-\infty}^t dt' \int d\Delta \chi_3(t') \rho_{12}(\Delta) e^{i\left[\omega t - (\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}\right]} e^{i\Delta(t-t')}$$

IV-11

Deux situations sont envisagées :

a)- EXCITATION PAR DES IMPULSIONS D'INTENSITES TRES  
DIFFERENTES ( $T^{(1)} \ll T^{(2)}$ )

Nous effectuons dans ce cas une mesure de l'énergie. Il peut être montré que dans les limites de puissance où on se place expérimentalement,  $W_1$  (défini au II-16) représente la contribution dominante au signal [20, 53]. Comme nous avons  $\rho_{12} = a_1 a_2^*$  il vient :

$$\langle \rho_{21}(\Delta) \rho_{12}(\Delta) \rangle(\tau_L) = \langle n_1(\Delta) n_2(\Delta) \rangle(\tau_L) \quad \text{IV-12}$$

où  $n_1$  et  $n_2$  sont les populations des états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ . Dans les conditions où on étudie l'excitation et pour un décalage  $t_{12}$  suffisamment court, ces quantités sont reliées simplement aux moments d'ordre un des populations des états noir et brillant . En effet on a :

$$|1\rangle \approx |d\rangle ; |2\rangle \approx |c\rangle \quad \text{IV-13}$$

d'où :

$$\langle W \rangle \propto \int \langle n_1 n_2 \rangle(\Delta, \tau_L) d\Delta \approx \int \langle n_c n_d \rangle(\Delta, \tau_L) d\Delta \quad \text{IV-14}$$

En  $t_{12} = 0$ , l'état noir n'est pas peuplé. L'état brillant, quant à lui, est fortement couplé au niveau fondamental et se peuple rapidement au cours de l'excitation ( $\langle n_c \rangle(t) \approx \langle n_d \rangle(t) \approx (N/2)W(\Delta)$  au bout de  $t = \left( \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}} \right)^{-1}$ ).

Quand  $t_{12} \neq 0$  l'état noir est sensible à l'excitation laser, mais il existe quand même un domaine de  $t_{12}$  autour duquel il reste peu peuplé devant l'état

brillant. Le temps caractéristique de variation de  $n_d$  est alors bien plus long que celui de  $n_c$  de sorte qu'on peut considérer  $n_c$  et  $n_d$  comme décorréélées pendant toute la durée de l'excitation, on aura alors l'égalité :

$$\langle n_c n_d \rangle \approx \langle n_c \rangle(t) \langle n_d \rangle(t) \quad ; \quad t > \left( \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}} \right)^{-1}$$

IV-15

b)- EXCITATION PAR DES IMPULSIONS D'INTENSITES  
EGALES ( $T^{(1)} = T^{(2)}$ )

On s'intéresse dans ce cas là à la corrélation entre le champ émis et un champ référence replique du champ sonde et ce pour un retard nul entre les faisceaux sonde et référence (Cf. chapitre II, paragraphe V). Comme on a :

$$|d\rangle \approx \frac{1}{\sqrt{2}} \left( |1\rangle - |2\rangle \right)$$

IV-16

$$|c\rangle \approx \frac{1}{\sqrt{2}} \left( |1\rangle + |2\rangle \right)$$

Il vient alors l'expression suivante pour le signal (Cf. II-24):

$$\langle C \rangle \propto \int \langle \rho_{12}(\Delta) \rangle d\Delta = \frac{1}{2} \int \langle n_c - n_d \rangle(\Delta, \tau_L) d\Delta \quad \text{IV-17}$$

Dans les deux situations expérimentales envisagées, le signal s'exprime simplement en fonction des moments d'ordre un  $\langle n_c \rangle$  et  $\langle n_d \rangle$  des populations des états brillants et noir et que nous allons déterminer dans ce qui suit.



2)- Calcul des moments d'ordre un des populations

L'équation de la matrice densité s'écrit pour le système ( $|0\rangle$ ,  $|c\rangle$ ,  $|d\rangle$ ):

$$\dot{\mathbf{X}} = \mathbf{A} \mathbf{X} \quad \text{IV-18}$$

avec :

$$\mathbf{A} = \mathbf{A}_0 + \mathbf{A}_1 \quad \text{IV-19}$$

$$\mathbf{X} = \begin{bmatrix} \rho_{dc} \\ \rho_{0c} \\ \rho_{d0} \\ n_{d0} \\ n_{c0} \\ \rho_{0d} \\ \rho_{c0} \\ \rho_{cd} \end{bmatrix} \quad \mathbf{A}_0 = -i \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\Delta & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -\Delta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \Delta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{A}_1 = -i \begin{bmatrix} 0 & -F_1^*/2 & F_2/2 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -F_1/2 & 0 & 0 & 0 & F_2/2 & 0 & 0 & 0 \\ F_2^*/2 & 0 & 0 & -F_1^*/2 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & F_2^*/2 & -F_1 & 0 & 0 & F_1^* & -F_2/2 & 0 \\ 0 & F_2^* & -F_1/2 & 0 & 0 & F_1^*/2 & -F_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & F_1/2 & 0 & 0 & 0 & -F_2/2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -F_2^*/2 & 0 & 0 & F_1^*/2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -F_2^*/2 & F_1/2 & 0 \end{bmatrix}$$

avec  $F_1 = (\chi_1 \cos \beta - \chi_2 \sin \beta)$  IV-20

$F_2 = (\chi_1 \sin \beta + \chi_2 \cos \beta)$

Cette équation peut s'intégrer formellement pour donner :

$$\mathbf{X}(t) = e^{\mathbf{A}_0(t-t_0)} \mathbf{X}(t_0) + \int_{t_0}^t e^{\mathbf{A}_0(t-t')} \mathbf{A}_1(t') \mathbf{X}(t') dt'$$

IV-21

sachant que  $\langle \mathbf{A}_1 \rangle = 0$  et en substituant cette expression de  $\mathbf{X}$  dans le second membre de l'équation IV- 18, on obtient l'équation suivante pour la valeur moyenne de  $\dot{\mathbf{X}}$  :

$$\langle \dot{\mathbf{X}} \rangle(t) = \mathbf{A}_0 \langle \mathbf{X} \rangle(t) + \int_{-\infty}^t \langle \mathbf{A}_1(t') e^{\mathbf{A}_0(t-t')} \mathbf{A}_1(t') \mathbf{X}(t') \rangle dt'$$

IV-22

Cette expression peut être simplifiée en tenant compte des deux résultats suivants. Un élément quelconque  $(\mathbf{A}_1)_{ij}(t)$  est décorrélé d'un autre élément  $(\mathbf{A}_1)_{kl}(t+\tau)$  dès que  $|\tau|$  est plus grand que  $\tau_M$ , le plus grand des temps  $\tau_c$  et  $t_{12}$ . De plus l'inverse de l'amplitude moyenne des coefficients de  $\mathbf{A}_1$  fixe une limite inférieure au temps caractéristique d'évolution des quantités atomiques dans  $\mathbf{X}$  [45]. Ce temps limite est le plus petit entre  $(\chi_1^{(0)})^{-1}$  et  $(\chi_2^{(0)})^{-1}$ . D'après IV-10,  $(\chi_1^{(0)})^{-1}, (\chi_2^{(0)})^{-1} \gg \tau_M$ . On peut alors choisir un intervalle de temps  $\tau$ , tel que :

$$\tau \ll (\chi_1^{(0)})^{-1}, (\chi_2^{(0)})^{-1} \quad \text{IV-23}$$

$$\tau \gg \tau_M \quad \text{IV-24}$$

La première de ces inégalités implique que le système n'évolue pas sensiblement pendant l'intervalle  $\tau$ . On peut donc écrire:

$$\mathbf{X}(t'-\tau) \approx \mathbf{X}(t') \quad \text{IV-25}$$

L'état du système au temps  $(t'-\tau)$  est entièrement déterminé par les valeurs prises par le champ aux instants antérieurs à  $(t'-\tau)$ . Il résulte de l'inégalité IV-24 que l'état du système au temps  $(t'-\tau)$  n'est pas corrélé avec la valeur du champ à l'instant  $t'$ . On aura (pour  $t > t' > (t'-\tau)$ ) :

$$\langle \mathbf{A}_1(t) e^{\mathbf{A}_0(t-t')} \mathbf{A}_1(t') \mathbf{X}(t'-\tau) \rangle \approx \langle \mathbf{A}_1(t) e^{\mathbf{A}_0(t-t')} \mathbf{A}_1(t') \rangle \langle \mathbf{X}(t'-\tau) \rangle \quad \text{IV-26}$$

et d'après IV-23 :

$$\approx \langle \mathbf{A}_1(t) e^{\mathbf{A}_0(t-t')} \mathbf{A}_1(t') \rangle \langle \mathbf{X}(t') \rangle \quad \text{IV-27}$$

Le système IV-22 se réduit alors à un système d'équations différentielles à coefficients constants :

$$\langle \dot{\mathbf{X}} \rangle = \left[ \mathbf{A}_0 + \int_{-\infty}^t \langle \mathbf{A}_1(t) e^{\mathbf{A}_0(t-t')} \mathbf{A}_1(t') \rangle \right] \langle \mathbf{X}(t) \rangle \quad \text{IV-28}$$

Cette méthode permettant de décorrélérer le mouvement atomique du champ exciteur est appelée procédure de décorrélation standard ou approximation de Bourret et est valable dans les limites imposées par IV-23 et IV-24 [45].

Le terme  $e^{\mathbf{A}_0(t-t')}$  peut être pris égal à l'unité dans l'expression IV-28 puisque d'après IV-10, on a  $\tau_M \Delta_D \ll 1$ . On obtient alors pour les quantités  $\langle \rho_{dc} \rangle$ ,  $\langle n_0 - n_d \rangle$ ,  $\langle n_0 - n_c \rangle$ ,  $\langle n_d \rangle$ , le système :

$$\begin{cases}
 \langle \dot{\rho}_{dc} \rangle = -\frac{1}{4} G \left( T^{(1)} T^{(2)} \right)^{-1/2} \langle n_c - n_d \rangle - \frac{1}{4} \left( \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}} \right) \langle \rho_{dc} \rangle \\
 \langle \dot{n}_0 - \dot{n}_d \rangle = -\frac{1}{2} G \left( T^{(1)} T^{(2)} \right)^{-1/2} \langle \rho_{cd} \rangle - \frac{1}{2} \left( \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}} \right) \langle n_0 - n_c \rangle \\
 \langle \dot{n}_0 - \dot{n}_c \rangle = \frac{1}{2} G \left( T^{(1)} T^{(2)} \right)^{-1/2} \langle \rho_{cd} \rangle - \left( \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}} \right) \langle n_0 - n_c \rangle
 \end{cases} \quad \text{IV-29}$$

avec :

$$G(t_{12}) = \int_0^{t_{12}} g(\tau) \frac{d\tau}{\tau_c} \quad ; \quad g(\tau) = \frac{\int \langle \mathcal{E}_i(t) \mathcal{E}_i^*(t-\tau) \rangle dt}{\int \langle |\mathcal{E}_i(t)|^2 \rangle dt} \quad \text{IV-30}$$

Nous résolvons ce système dans l'hypothèse où les équations satisfaites par  $\langle \rho_{cd} \rangle$  et  $\langle n_0 - n_c \rangle$  atteignent rapidement un régime stationnaire. Nous nous assurerons à postériori que les solutions obtenues vérifient bien la condition requise par l'approximation de régime stationnaire :

$$\langle \dot{n}_0 - \dot{n}_c \rangle \ll \left( \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}} \right) \langle n_0 - n_c \rangle \quad \text{IV-31}$$

$$\langle \dot{\rho}_{cd} \rangle \ll \left( \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}} \right) \langle \rho_{cd} \rangle \quad \text{IV-32}$$

En égalant dans IV-29 le second membre des équations 1 et 3 à 0 il vient :

$$\begin{cases}
 \langle n_c - n_d \rangle(t) = \frac{N W(\Delta)}{2} e^{-\frac{3}{4} G^2 \cos^2 \beta s_1 \frac{t}{\tau_L}} \\
 \langle n_d \rangle(t) = \frac{N W(\Delta)}{3} \left( 1 - e^{-\frac{3}{4} G^2 \cos^2 \beta s_1 \frac{t}{\tau_L}} \right)
 \end{cases} \quad \text{IV-33}$$

La condition de validité de l'approximation stationnaire s'écrit alors :

$$\frac{G \sqrt{T^{(1)}T^{(2)}}}{\left(T^{(1)} + T^{(2)}\right)} \ll 1 \quad \text{IV-34}$$

Dans notre cas les impulsions 1 et 2 sont issues d'une même impulsion initiale et sont donc parfaitement corrélées. L'existence d'un décalage  $t_{12}$  permet d'établir un parallèle avec le cas où l'excitation serait produite par des impulsions partiellement corrélées. En effet, en  $t_{12} = 0$ , les valeurs instantanées des champs 1 et 2 auxquels est soumis un atome de l'échantillon sont identiques. Pour  $t_{12} \neq 0$ , ces deux valeurs sont différentes car chacune fait intervenir le champ initial pris en un instant différent de l'autre. Les deux "parties" du champ initial déterminé par ces deux instants sont partiellement corrélées. Cette image suggère d'établir une équivalence entre notre cas et celui où l'excitation serait produite par deux impulsions synchrones mais partiellement corrélées, pour lesquelles on aurait :

$$\langle \chi_1(t) \chi_2^*(t-\tau) \rangle = \frac{g(\tau) \sqrt{\phi}}{\tau_c} \sqrt{T^{(1)}T^{(2)}} \quad \text{IV-35}$$

où  $g(\tau)$  est définie dans IV-32,  $\phi$  est le degré de corrélation entre les champs 1 et 2 qui vérifie :

$$0 \leq \phi \leq 1 \quad \text{IV-36}$$

La résolution du système IV-22 dans ce cas montre que l'on obtient en effet les mêmes expressions pour les populations à condition de remplacer  $\phi$  par  $1-G^2$  (et ce dans la limite où  $\left[\sqrt{1-\phi} \left(T^{(1)}T^{(2)}\right)^{1/2} / (T^{(1)} + T^{(2)})\right] \ll 1$  ).

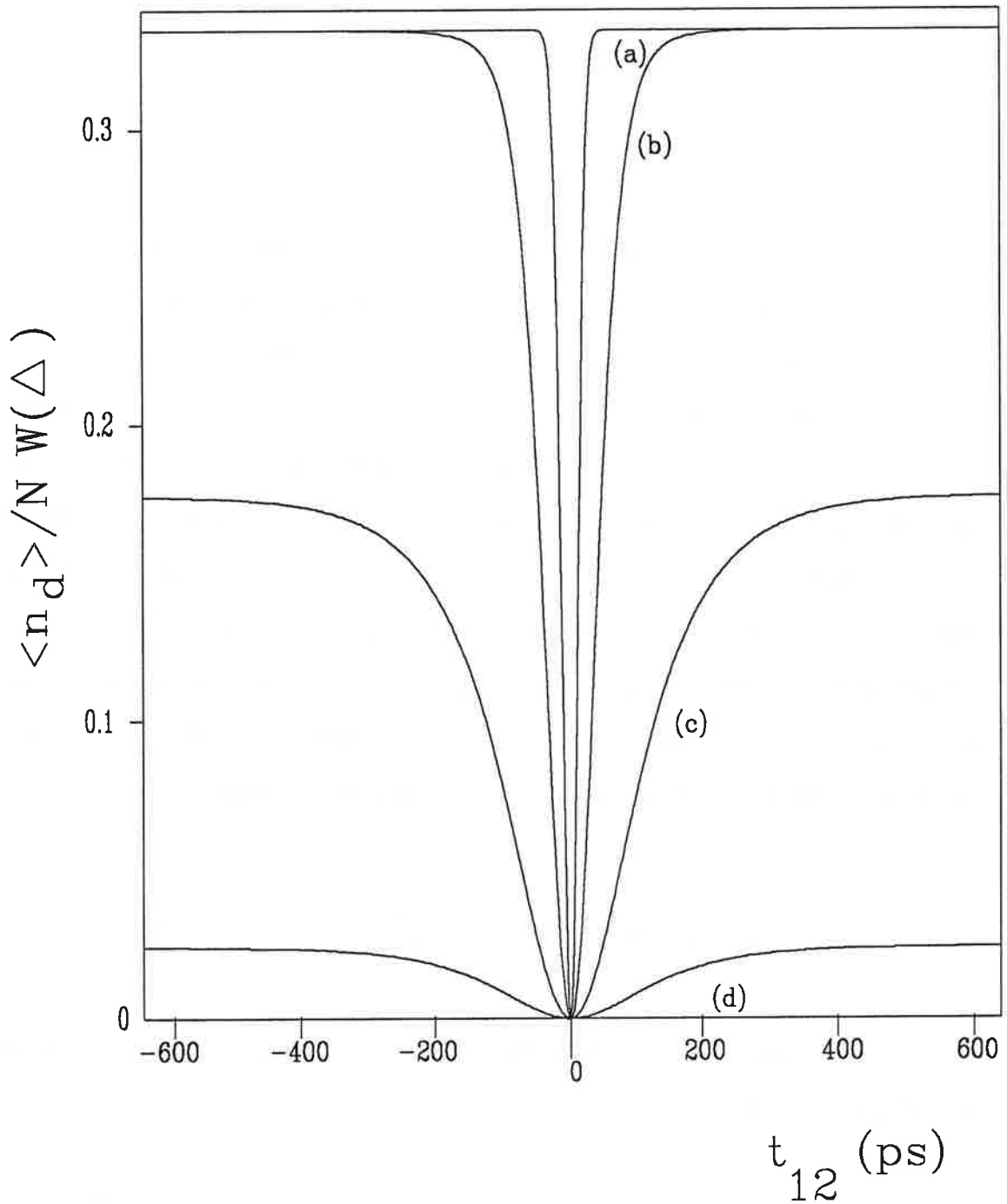


FIGURE IV-2: Dépendance de la population moyenne de l'état noir en fonction du décalage  $t_{12}$ . On a  $s_2 \gg s_1$  et  $s_1 = 100$  (a); 10 (b); 1 (c); 0.1 (d). On a pris  $g(\tau) = 1 / \text{Ch}(\pi\tau / 2\tau_c)$  et  $\tau_c = 150$  ps.

### 3)- Variations du signal en fonction de $t_{12}$

#### a)- EXPRESSION DE L'ENERGIE DU SIGNAL LORSQUE

$$T^{(2)} \ll T^{(1)} \quad (\cos \beta \approx 1)$$

La relation IV-34 est toujours vérifiée, les expressions IV-33 pour les populations sont valables pour toute valeur de  $t_{12}$ . La condition  $\langle n_d \rangle \ll \langle n_c \rangle$  est réalisée pour :

$$s_1 G^2 \ll 1 \quad \text{IV-37}$$

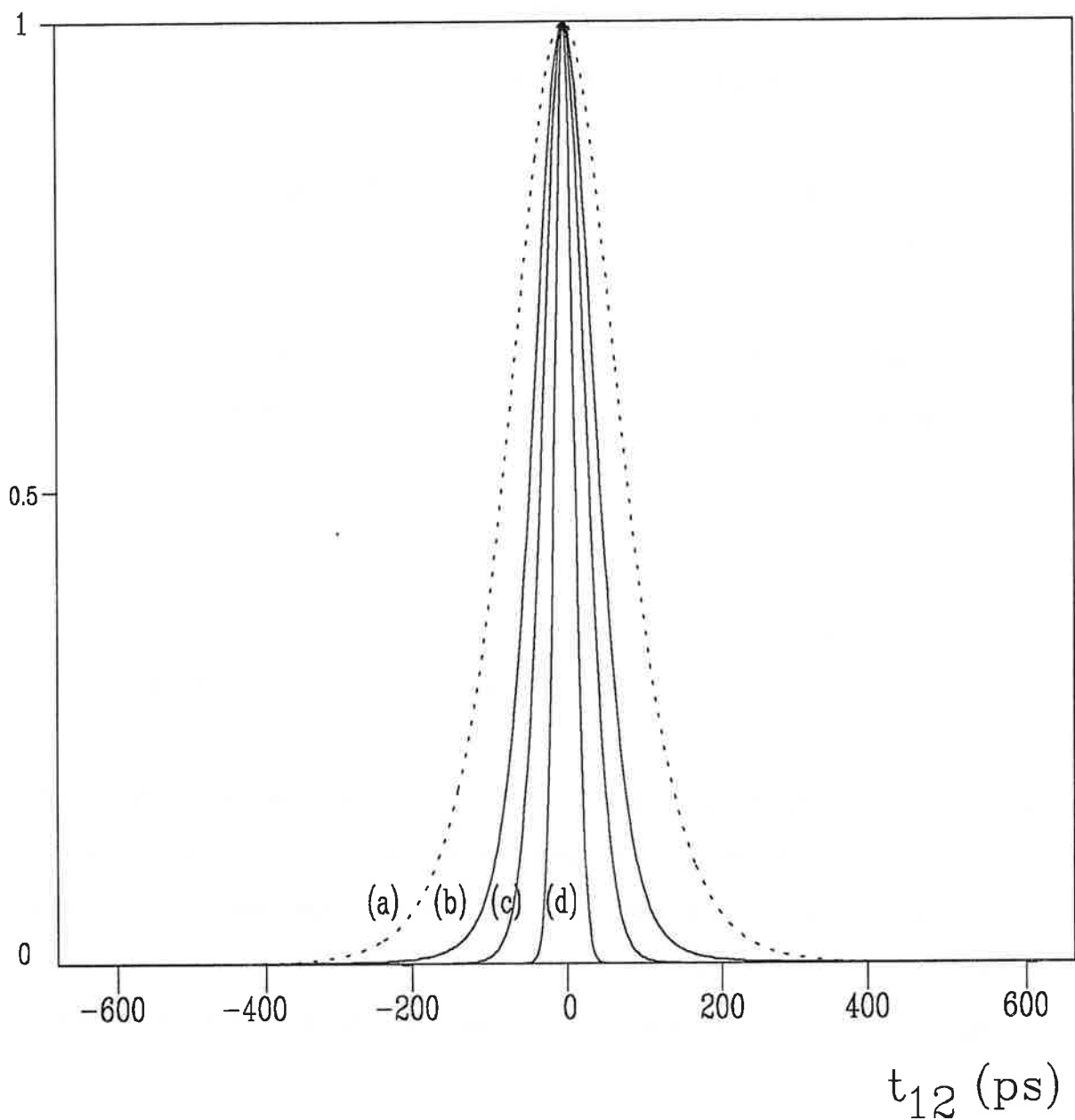
L'énergie vaut alors :

$$\langle W \rangle \approx \frac{N}{8} s_1 G^2 \quad \text{IV-38}$$

Si le champ 1 est faible, l'inégalité IV-37 est vraie pour toute valeur de  $t_{12}$ , le signal consiste alors en un creux centré en  $t_{12} = 0$  et de largeur  $\tau_c$ . Si le champ 1 est fort l'inégalité IV-37 n'est vérifiée que pour des décalages  $t_{12}$  plus courts qu'un temps de l'ordre de  $(\tau_c/\sqrt{s_1})$ . Pour  $|t_{12}| > (\tau_c/\sqrt{s_1})$  la population de l'état noir (Fig.IV-2) est identique à celle des deux autres états et on a:

$$\langle n_0 \rangle(\Delta, \tau_L) = \langle n_c \rangle(\Delta, \tau_L) = \langle n_d \rangle(\Delta, \tau_L) = \frac{N W(\Delta)}{3} \quad \text{IV-39}$$

Le signal présente un creux, centré toujours en  $t_{12} = 0$ , d'une largeur de l'ordre de  $(\tau_c/\sqrt{s_1})$  fonction décroissante de la puissance du champ 1.



**FIGURE IV-3:** Courbes théoriques.

(a): carré  $g^2(t_{12})$  de la fonction d'autocorrélation. On a pris  $g(t_{12}) = 1 / \text{Ch}(\pi t_{12} / 2\tau_c)$  et  $\tau_c = 150$  ps. La largeur à mi hauteur vaut  $1.12 \tau_c$ .

(b); (c); (d): quantité  $|\langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle|^2$  calculée en fonction de  $t_{12}$  pour respectivement  $s_1 = s_2 = 10$  ; 20 ; 100. La valeur en  $t_{12} = 0$  a été normalisé à 1.



b)- FONCTION DE CORRELATION DU SIGNAL AVEC UNE  
IMPULSION REFERENCE LORSQUE  $T^{(1)} = T^{(2)}$

La relation IV-34 est vérifiée pour  $t_{12} \ll \tau_c$  ; on a alors dans cette région :

$$\langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rangle = \frac{1}{2} \langle n_c - n_d \rangle(\Delta, \tau_L) = \frac{N W(\Delta)}{4} e^{-\frac{3}{8} s_1 G^2(t_{12})} \quad \text{IV-40}$$

d'où :

$$\langle C(t_{12}) \rangle \propto \frac{N}{4} e^{-\frac{3}{8} s_1 G^2} \propto \langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle \quad \text{IV-41}$$

Le profil consiste alors en un pic gaussien centré en  $t_{12} = 0$ . Sa largeur étant de l'ordre de  $(\tau_c / \sqrt{s_1})$  (Fig. IV-3).

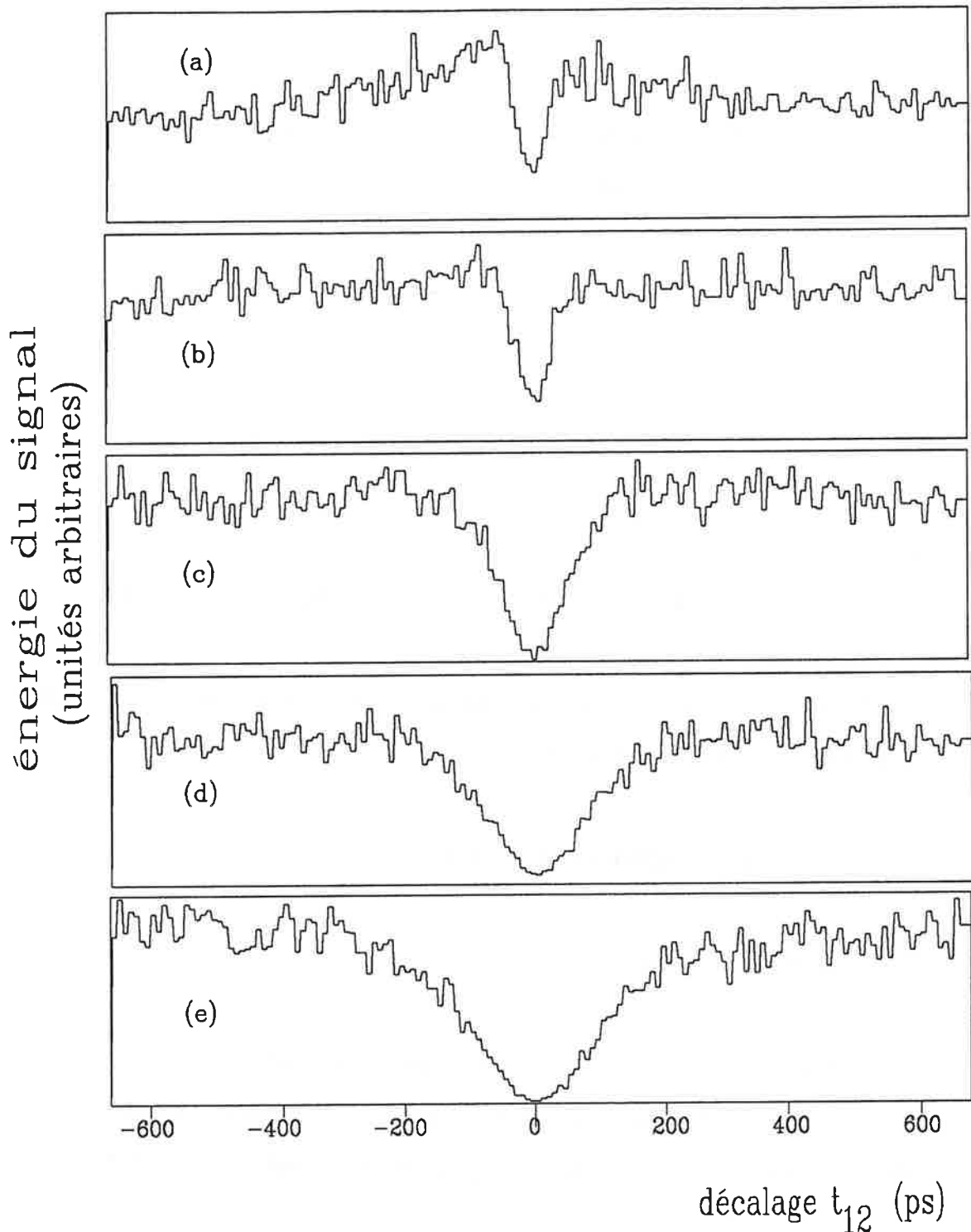
#### IV- RESULTATS EXPERIMENTAUX

##### 1)- Mesure de l'énergie

Le montage expérimental est le même que celui décrit au chapitre III. Les polariseurs à l'entrée du four sont disposés de manière à réaliser les conditions suivantes sur les polarisations  $\vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3$  des impulsions 1 2 et 3:

$$\vec{e}_1 // \vec{e}_3 ; \vec{e}_1 \perp \vec{e}_2 \quad \text{IV-42}$$

La figure IV-4 montre la dépendance de l'énergie du signal émis en fonction du décalage  $t_{12}$ , le temps de cohérence est  $\tau_c = 120$  ps. Quand le champ 1 est faible, le signal consiste bien en un creux centré en 0 et dont la largeur à



**FIGURE IV-4:** Résultats expérimentaux. Variation de l'énergie du signal émis en fonction du décalage  $t_{12}$  entre les deux premières impulsions excitatrices. Le paramètre de saturation  $s_2$  du champ le plus fort est égal à 52 pour toutes les figures tandis que l'on a  $s_1 = 17$  (a); 8.75 (b); 1.75 (c); 0.625 (d); 0.0625 (e). Ces courbes ont été obtenues pour  $\tau_c = 120$  ps.

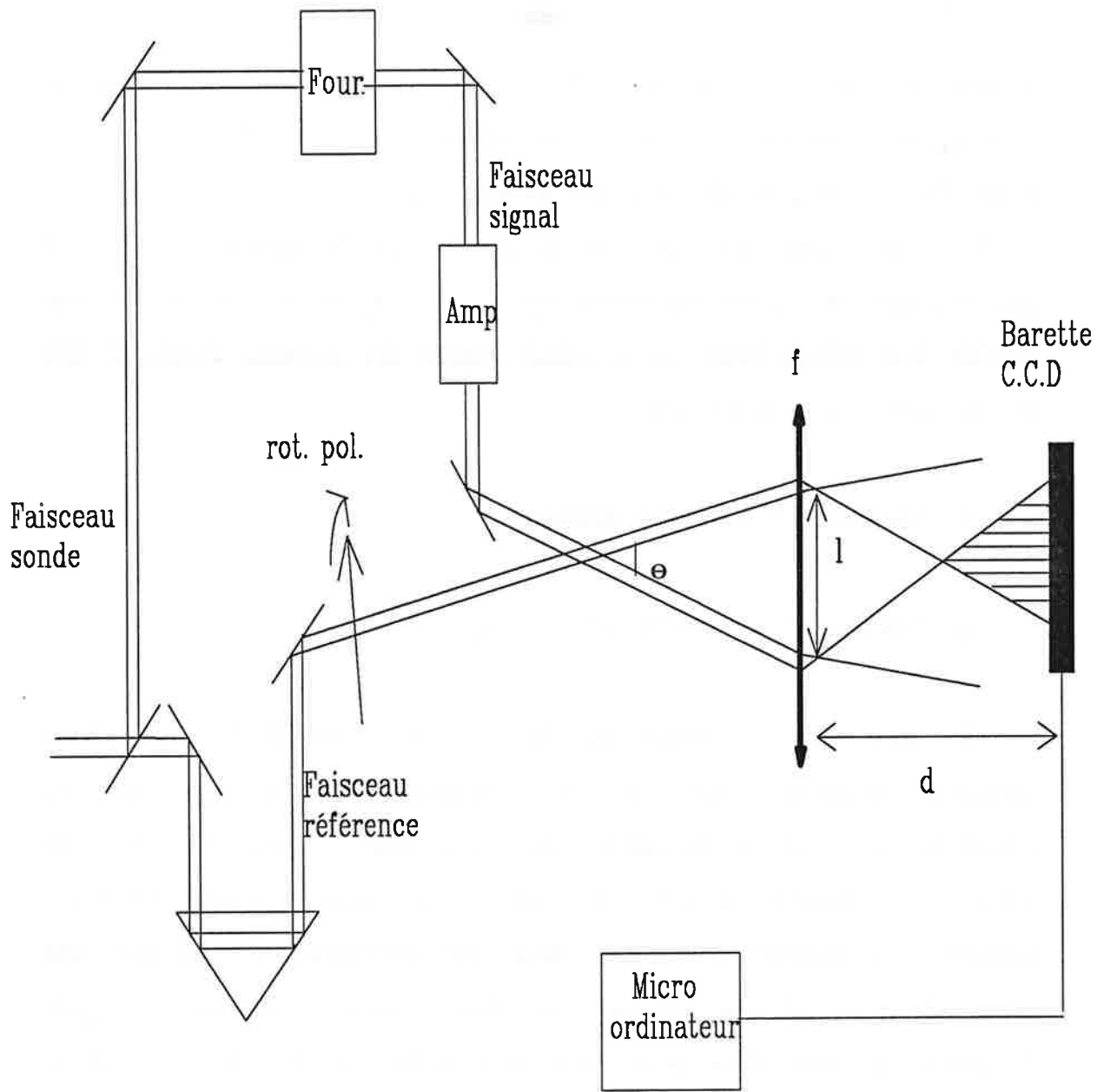


FIGURE IV-5: Dispositif expérimental pour la mesure de la cohérence

$$\text{Zeeman } \langle \rho_{12} \rangle(t_{12})$$

mi-profondeur est de l'ordre de  $\tau_c$ . En augmentant la puissance de l'impulsion  $I$  ce creux se rétrécit et on atteint un rapport de 7 entre le cas de la figure IV-4-e) et celui de la figure IV-4-a). Dans ce dernier cas, le signal en 0 est non négligeable; ceci est dû au fait que le rapport  $T^{(2)}/T^{(1)}$  n'est plus très petit et que l'approximation  $n_1 \approx n_d$  ;  $n_2 \approx n_c$  est de plus en plus mal vérifiée. Une théorie basée sur le calcul complet des moments d'ordre 2 [53] prévoit ce type de comportement.

## 2)- Mesure de la cohérence Zeeman

### a)- CORRELATION D'AMPLITUDE [33]

Le dispositif expérimental est décrit à la figure IV-5 . Une lame séparatrice permet de prélever un faisceau référence sur le faisceau sonde. La polarisation de celui ci est tournée par un rotateur de polarisation de sorte qu'elle soit parallèle à celle du signal. Le faisceau signal, de faible intensité, est amplifié optiquement pour être détectable. On introduit une petite séparation angulaire  $\theta$  entre les deux faisceaux référence et signal. Ils produisent alors deux points sources distincts dans le plan focal d'une lentille de focale  $f$ , la distance entre les deux taches est  $l = f \theta$ . On observe des franges d'interférence type Young à une distance  $d$  des sources très grande devant  $l$ . On place à cette distance une barette de photodiodes (modèle 7831 + modèle 7931c, Thomson-CSF ). L'interfrange  $j = \lambda d/l$  vaut typiquement 1.2 mm pour  $f = 5$  cm et  $d = 1$  m. Les chemins optiques entre les faisceaux signal et référence sont ajustés de sorte que ces champs soient synchrones sur la barette. Cette dernière mesure la distribution spatiale de l'éclairement pour chaque tir laser. Le signal numérisé est transféré au micro

ordinateur par l'intermédiaire d'une carte d'acquisition ( modèle SOF30170, Styrel ) et la transformée de Fourier de la distribution spatiale est calculée par un processeur spécialisé (PCFFT, Ariel). Comme on n'a pas doté le montage d'une stabilité interférométrique, il s'ensuit que les franges d'interférence sont susceptibles de se déplacer d'un tir à l'autre. Nous avons choisi de mesurer seulement le contraste des franges donné par  $|C(t_{12})|$  et qui est insensible à ces déplacements. Pour cela on calcule le module de la transformée de Fourier pour la fréquence spatiale  $1/j$  et on la normalise par rapport à sa valeur pour la fréquence spatiale 0. La quantité obtenue est proportionnelle au contraste des franges [33] . Cette normalisation nous permet d'éliminer l'influence des fluctuations d'intensité du deuxième laser fournissant l'impulsion sonde (les intensités des faisceaux signal et référence sont proportionnelles à l'intensité du faisceau sonde). La quantité  $|C(t_{12})|^2$  moyennée sur un grand nombre de tirs lasers (de l'ordre de 30 mesures pour chaque  $t_{12}$ ) nous fournit un estimateur de  $\langle |C(t_{12})|^2 \rangle$ . Cette fonction diffère de  $|\langle C(t_{12}) \rangle|^2$  dont nous avons établi l'expression en termes de  $\langle \rho_{12}(t_{12}) \rangle$  (IV-41). Cependant on montre dans l'appendice 1 que,  $\langle |C|^2 \rangle$  et  $|\langle C \rangle|^2$  coïncident pourvu que :

$$\left( \Delta_D \tau_L \right)^2 \gg s_1 \gg 1 \quad \text{IV-43}$$

## b)- RESULTATS EXPERIMENTAUX

La figure IV-6-a) représente le carré de la fonction de corrélation  $g^2(\tau)$  des deux premières impulsions. Celle ci est obtenue en effectuant une corrélation croisée d'amplitude entre les deux faisceaux pompes. Cette

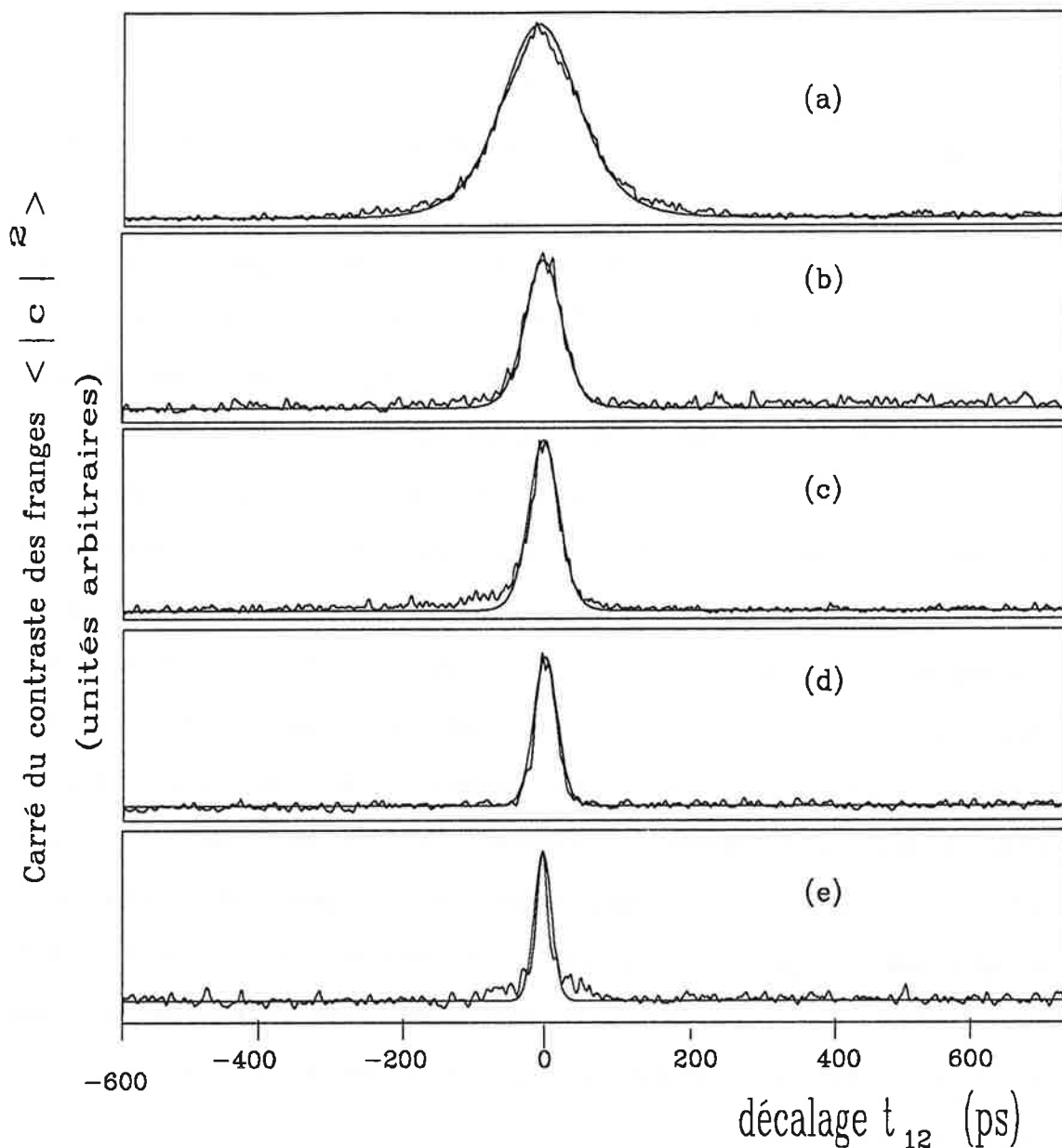


FIGURE IV-6: (a): Courbes expérimentale et théorique représentant le carré du contraste des franges obtenues par superposition des faisceaux 1 et 2. La courbe théorique  $g^2(t_{12})$  est obtenue pour  $g(\tau) = 1/ \text{Ch}(\pi\tau/ 2\tau_c)$  et  $\tau_c = 115$  ps (moyennant un fond supplémentaire).

(b); (c); (d); (e): Carré du contraste des franges obtenues par superposition des faisceaux signal et référence. Les courbes théoriques sont obtenues à partir de la fonction  $g(\tau)$  définie plus haut et pour des paramètres de saturation  $s_1 = s_2 = 14; 20; 31$  et  $60$  respectivement. Les enregistrements sont effectués en fonction du décalage  $t_{12}$  entre les deux premières impulsions excitatrices.

fonction est représentée en fonction du décalage  $\tau$  entre les deux impulsions. La largeur à mi-hauteur vaut  $1.12 \tau_c$ , ce qui nous permet d'avoir accès expérimentalement à la valeur de  $\tau_c$ . Les autres courbes de la figure IV-6 représentent la moyenne du carré du contraste  $\langle |C|^2 \rangle$  en fonction du décalage  $t_{12}$  entre impulsions. Les puissances des champs 1 et 2 ont été maintenues égales.

Les résultats obtenus montrent qu'il est possible de faire apparaître des structures temporelles plus courtes que le temps de corrélation alors que ce dernier représente le paramètre temporel le plus court du problème (Cf. Eq. IV-10). Ces structures sont bien marquées ce qui a facilité leur détection [20, 54, 55].

## V- APPLICATION A LA SELECTION SPATIALE D'ATOMES

Nous avons supposé jusqu'ici que le décalage  $t_{12}$  était le même pour tous les atomes de l'échantillon. En fait ceci n'est plus vrai dès qu'une séparation angulaire existe entre les faisceaux. Le décalage  $t_{12}$  à la position  $\vec{r}$  est donné par :

$$t_{12}(\vec{r}) = t_{12}(0) + (\vec{n}_2 - \vec{n}_1) \cdot \vec{r} / c \quad \text{IV-44}$$

où :

$$\vec{n}_i = \vec{k}_i / |\vec{k}_i| \quad \text{IV-45}$$

Le diamètre  $d$  des faisceaux étant de 3 mm, et l'angle de l'ordre de 20 mrd, la variation transverse maximale de  $t_{12}$  est donnée par :

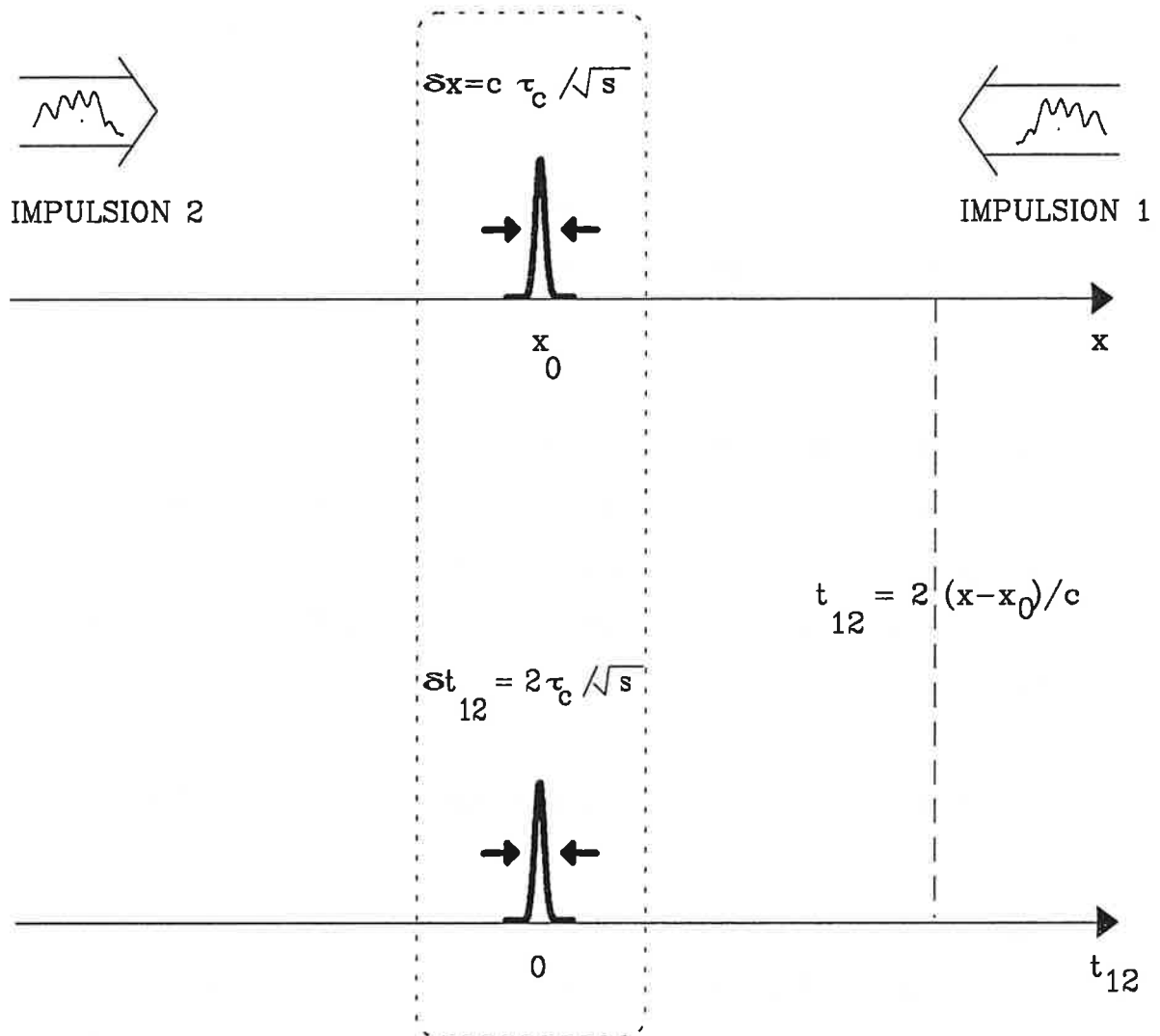


FIGURE IV-7: Excitation avec des impulsions de pompe se propageant en sens inverse.



$$\delta t_{12} = \frac{2d}{c} \sin \frac{(\vec{n}_2, \vec{n}_1)}{2} \approx 65 \text{ fs.} \quad \text{IV-46}$$

Cette valeur est bien plus courte que la largeur du creux ou du pic le plus étroit observé et tous les atomes voient donc le même décalage  $t_{12}$ . Cette situation change radicalement quand les impulsions 1 et 2 se propagent en sens inverse. Dans ce cas le décalage  $t_{12}$  varie sur l'axe de propagation des impulsions et on a, à l'abscisse  $x$  sur cet axe, (Fig.IV-7) :

$$t_{12}(x) = 2(x-x_0)/c \quad \text{IV-47}$$

où  $x_0$  est la position où  $t_{12} = 0$ . D'après les résultats obtenus, seuls les atomes situés dans une région :

$$\delta x \approx c \tau_c / \sqrt{s_1} \quad \text{IV-48}$$

autour de la position  $x_0$  sont dans un état final caractérisé par une valeur non nulle de  $\langle \rho_{12} \rangle$ . On réalise ainsi une préparation spatialement sélective des atomes, la résolution étant fixée par  $\delta x$ .

La résolution spatiale ultime que l'on puisse atteindre dans cette sélection est imposée par les conditions inhérentes à la validité du modèle théorique utilisé et à la nature du système étudié. Ainsi le modèle adopté suppose que les temps de relaxation du système atomique sont très supérieurs à la durée des impulsions. Dans le cas contraire, et pourvu que la relaxation collisionnelle reste négligeable, la durée des impulsions doit être remplacée par la durée de vie  $T_p$  du niveau supérieur dans l'expression des paramètres de saturation. De plus nous avons supposé que la fréquence de Rabi reste inférieure à la largeur spectrale  $\tau_c^{-1}$  des impulsions excitatrices. Les deux

limitations ci-dessus fixent une valeur ultime pour la résolution spatiale  $\delta x_1$  égale à :

$$\delta x_1 = c \tau_c \sqrt{\tau_c / T_p} \quad \text{IV-49}$$

Dans la pratique, pour des lasers courants, il est difficile d'augmenter arbitrairement le rapport  $\tau_L / \tau_c$ . Avec des valeurs réalistes de 1 ps pour  $\tau_c$  et 10 ns pour  $\tau_L$  et une énergie alors limite de 0,6 Joule par impulsion (dans le cas du Strontium), on atteint d'après IV-48 une résolution de l'ordre du  $\mu\text{m}$ .

Nous avons implicitement supposé dans notre modèle que les atomes diffusaient peu, de sorte que le réseau de cohérence Zeeman puisse se maintenir pendant toute la durée des impulsions. Ceci impose que la distance parcourue par les atomes selon l'axe Ox n'excède pas un pas du réseau pendant toute la durée de l'excitation. Le pas du réseau étant égal à  $\lambda/2$ , la validité de cette hypothèse est soumise à la condition :

$$|v_x| \tau_L \ll \lambda/2 \quad \text{IV-50}$$

Pour une vapeur atomique en équilibre thermodynamique elle peut encore se réécrire comme :

$$\Delta_D \tau_L \ll 1 \quad \text{IV-51}$$

Cette condition est sévère car elle impose une limite supérieure  $\Delta_D^{-1}$  à la durée des impulsions utilisées. Par exemple, pour le Strontium ( $\Delta_D^{-1} = 235$  ps) et pour un temps de cohérence de 1 ps, cela donnerait une limite supérieure de

l'ordre de  $c\tau_c\sqrt{\tau_c\Delta_D} = 20 \mu\text{m}$  à la résolution. Pour un jet atomique illuminé par deux faisceaux lasers qui lui sont perpendiculaires, cette condition est bien moins restrictive; c'est seulement la vitesse transverse du jet qui doit vérifier la condition IV-50.

Quand la résolution spatiale désirée est meilleure que  $\lambda/2$ , une autre limitation apparaît : il devient nécessaire que le mouvement de diffusion des atomes selon Ox soit suffisamment lent pour que ces atomes ne quittent pas la région où on prétend les confiner. Cette condition s'écrit :

$$|v_x| \tau_L \ll \delta x \quad \text{IV-52}$$

La méthode ne pourra être utilisée que pour des jets tels que la composante transverse de la vitesse soit pour une résolution  $\delta x$  voulue plus petite que  $\frac{\delta x}{\tau_L}$ . Remarquons que cette dernière condition n'est pas particulière à notre cas, mais est générale à toute méthode de détection spatiale.

Enfin une dernière limitation à notre modèle provient de l'hypothèse d'un mouvement de translation classique de l'atome. Ceci impose que la précision sur la position des atomes est liée à la valeur de la composante de la vitesse atomique selon Ox par la relation de Heisenberg :

$$|v_x| \delta x \geq h/m_a \quad \text{IV-53}$$

où  $m_a$  est la masse d'un atome. Pour un jet atomique de strontium ( Masse atomique = 80 ) une résolution spatiale de  $1 \mu\text{m}$  est compatible avec le modèle classique si la vitesse transverse est supérieure à  $5 \cdot 10^{-3} \text{ m/s}$ .

Les différentes techniques permettant d'obtenir de hautes résolutions sur la position des atomes dans l'espace ont suscité un grand intérêt ces dernières années. La plupart des travaux qui leur sont consacrés portent sur la création de distributions atomiques variant sur de petites longueurs [56, 57, 58]. Les méthodes de détection se limitent principalement à l'utilisation de fil chaud. La résolution est alors au mieux d'une dizaine de microns. Récemment J.E. Thomas a proposé une méthode qui permet d'effectuer une excitation spatialement sélective des atomes et de mesurer alors la distribution spatiale obtenue [59, 60, 61]. Cette méthode est basée sur les transitions Raman entre deux états métastables. L'un des états est déplacé par effet Zeeman. Le champ magnétique responsable de ce déplacement varie rapidement en fonction de la coordonnée spatiale. La fréquence de résonance de la transition Raman varie donc en fonction de la position de l'atome. En faisant varier le champ magnétique on déplace la position où se produit l'accord à résonance. Cette méthode n'est pas efficace dans une vapeur atomique et s'applique à des jets. Pour obtenir une haute résolution il est nécessaire de produire des gradients de potentiel importants. La méthode proposée ici permet d'envisager la mesure directe de la densité transverse d'un jet et ce en l'absence de tout gradient de potentiel. Le principe de cette expérience est décrit par la figure IV-8. Les deux impulsions de pompe se propagent transversalement au jet. L'impulsion sonde (non corrélée aux impulsions de pompe) se propage parallèlement à l'impulsion 1. L'accord de phase est réalisé dans la direction  $\vec{k}_2$  de l'impulsion 2. La séparation entre le champ émis et l'impulsion 2 se fait par sélection temporelle à l'aide d'une cellule de Pockels. La corrélation croisée d'amplitude entre un faisceau référence et le faisceau émis (amplifié) fait apparaître un signal qui provient de la région  $\delta x$  autour de la position de retard nul entre les

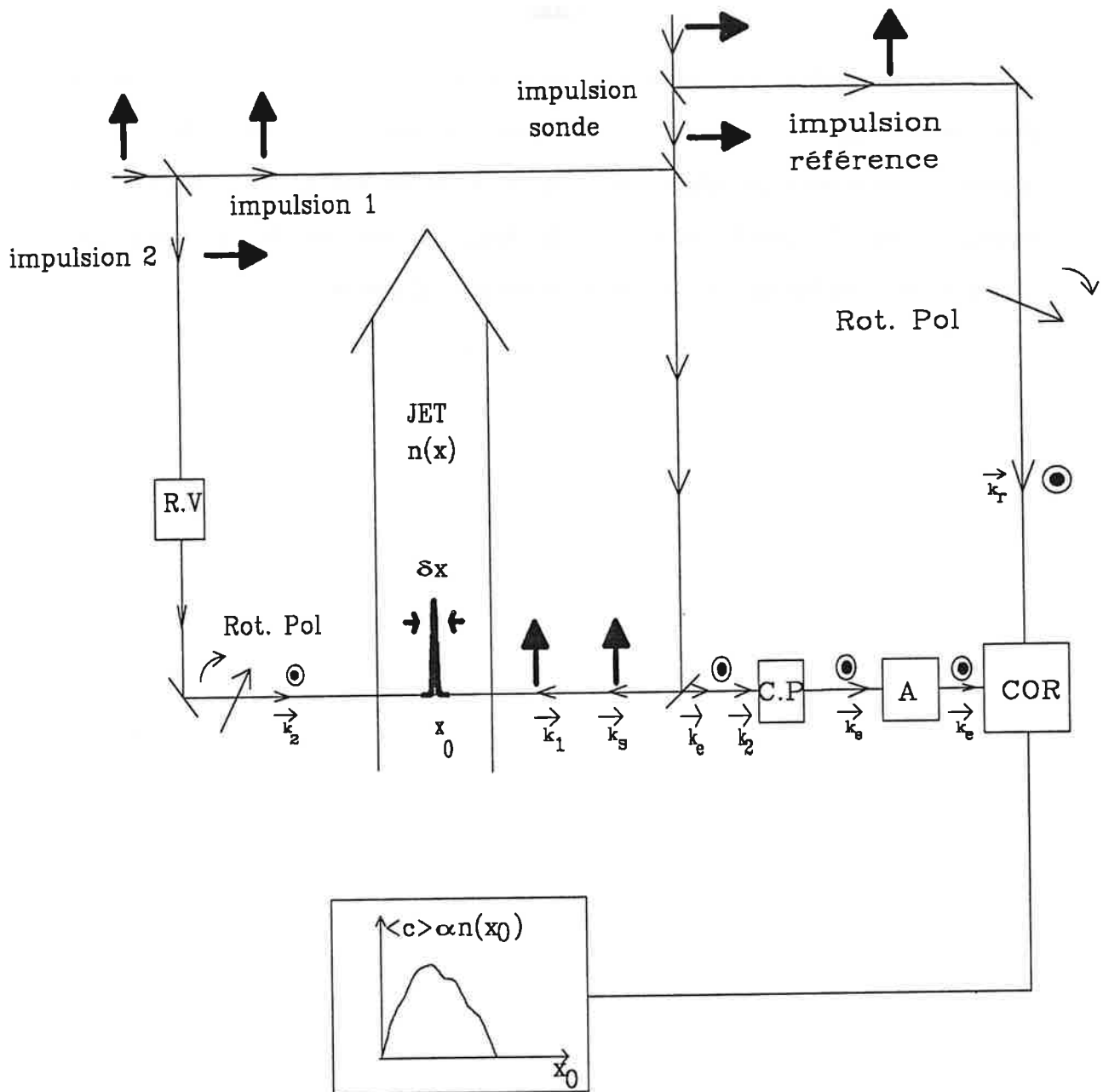
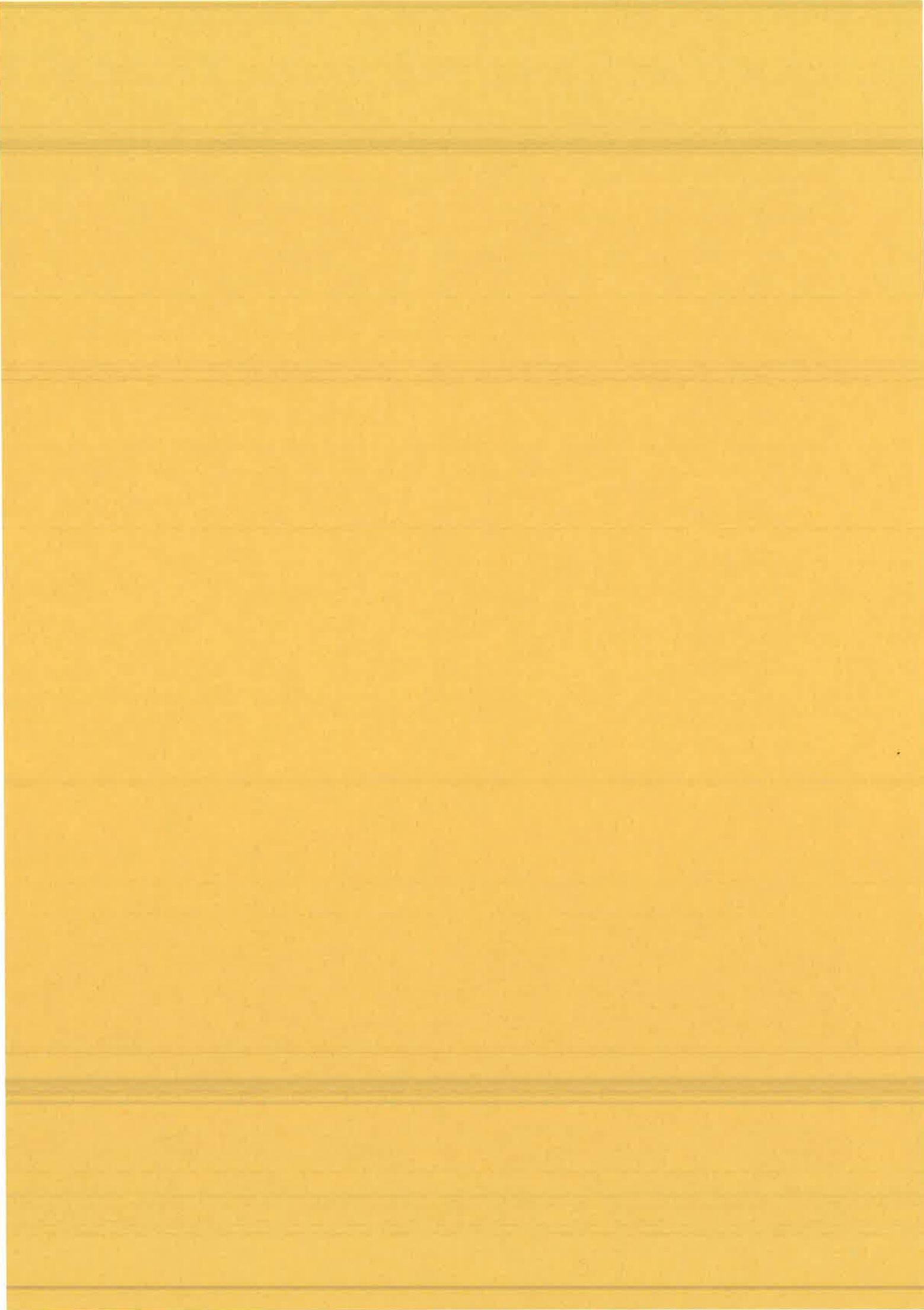


FIGURE IV-8

Configuration proposée pour analyser la distribution de densité d'un jet atomique

C.P: cellule de Pockels, A: amplificateur, COR: corrélateur d'amplitude  
R.V: retard variable.

impulsions de pompe. Ce signal est proportionnel au nombre d'atomes présents dans cette région. En variant de façon continue le retard relatif entre impulsions de pompe on déplace la position de retard nul à travers le jet : on reproduit alors le profil spatial de la densité transverse du jet avec une résolution  $\delta x$  dont les limites ont été discutées précédemment.







*CHAPITRE V*

**ANALYSE TEMPORELLE DU SIGNAL: ECHANTILLONNAGE  
PAR CORRELATION D'AMPLITUDE**

**I- INTRODUCTION**

Dans les expériences envisagées jusqu'à présent le système atomique est sondé lorsque le champ fort a cessé d'agir sur lui. On a alors accès à l'état du système atomique à la fin de l'excitation par le champ fort. Dans ce chapitre, nous nous intéressons à l'évolution du système atomique alors même qu'il interagit avec le champ fort. La situation la plus simple est celle d'un système soumis à un seul champ intense et qu'on sonde simultanément à l'aide d'une impulsion faible non corrélée avec le champ fort. Nous avons choisi une configuration d'excitation du type Kerr adaptée dans notre cas à la détection du signal émis et l'isolant efficacement du champ intense. Dans cette configuration ( Fig.V-1), le champ intense polarisé linéairement induit une anisotropie dans le milieu. Un deuxième faisceau sonde le milieu dans une direction différente de celle du champ intense et on place sur son trajet, avant et après l'échantillon, respectivement un polariseur et un analyseur croisés. L'axe du polariseur fait un angle de  $45^\circ$  avec la direction de polarisation du champ intense. A la sortie de l'échantillon le champ sonde est arrêté par l'analyseur. Un signal est néanmoins transmis dans cette direction en raison de l'anisotropie induite dans le milieu par le champ fort. Nous effectuons une corrélation croisée d'amplitude entre le champ émis et un

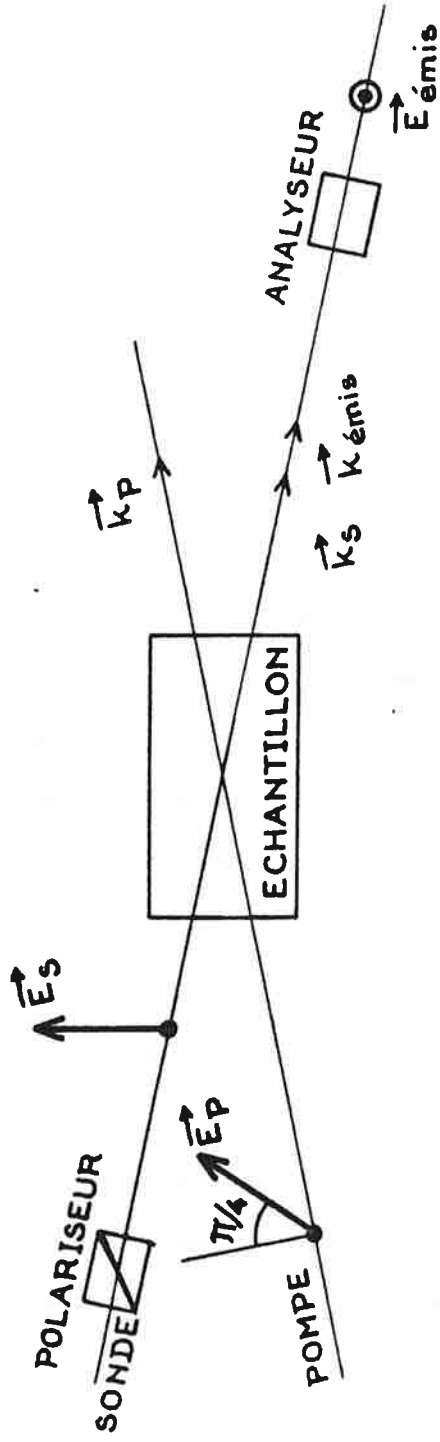


FIGURE V- 1: Principe d'une expérience d'effet Kerr.

faisceau référence, réplique du faisceau sonde. La quantité mesurée est la fonction de corrélation croisée d'amplitude entre les faisceaux référence et signal. Cette quantité est enregistrée en fonction du retard entre les faisceaux référence et sonde. Nous déterminons ainsi la fonction réponse moyenne du système soumis au champ intense, qui reflète plus précisément la relaxation, par le champ fort, des dipôles atomiques induits par le champ faible. La constante de temps de relaxation est proportionnelle au temps  $T$  caractéristique de l'évolution du système atomique soumis au champ fort qui a été défini dans les chapitres précédents. L'excitation d'un système atomique dans cette configuration permet d'effectuer ainsi une mesure de  $T$ .

Ce chapitre est organisé comme suit. Nous rappelons d'abord les différentes méthodes de détermination de la fonction réponse d'un système et notamment la technique de corrélation d'amplitude. Nous établissons ensuite l'expression de cette fonction dans le cas de l'effet Kerr en calculant le champ moyen émis par le système quand il est sondé par une impulsion cohérente dont la durée est courte devant tous les autres temps caractéristiques du système. Enfin nous présentons les résultats expérimentaux obtenus.

Nous avons aussi utilisé la technique de corrélation d'amplitude pour étudier la propagation d'une impulsion stochastique de faible intensité dans un milieu optiquement épais. Dans un tel milieu les effets de dispersion jouent un rôle fondamental et sont responsables de la déformation de l'impulsion au cours de sa propagation [22, 62, 63]. L'impulsion a une durée  $\tau_L$  et un temps de cohérence  $\tau_c$ . Les profils temporels obtenus par corrélation sont identiques à ceux d'une impulsion courte de durée  $\tau_c$  se propageant dans le milieu. L'étude de ces profils se fait en fonction de l'épaisseur optique

de l'échantillon. Ces études sont décrites dans l'article "OBSERVATION OF 0  
PI PULSE FORMATION WITH INCOHERENT LIGHT" reproduit à la fin de ce  
mémoire.

## II- ANALYSE RESOLUE EN TEMPS DE SIGNAUX TRANSITOIRES, ANALYSE PAR CORRELATION

L'excitation d'un système physique par une impulsion lumineuse donne naissance à un rayonnement dépendant des caractéristiques propres au milieu étudié. Quand cette impulsion est de faible intensité, l'information sur ce milieu est contenue dans la fonction réponse linéaire  $\mathcal{R}(\tau')$  définie par la relation suivante entre le champ exciteur  $\mathcal{E}(t)$  et le champs rayonné  $\mathcal{E}_e(t)$  :

$$\mathcal{E}_e(t) = \int_0^{\infty} \mathcal{E}(t - \tau') \mathcal{R}(\tau') d\tau' \quad \text{V-1}$$

La méthode la plus directe pour mesurer cette réponse consiste à exciter le milieu par une impulsion de durée courte devant le temps caractéristique de la réponse et à suivre ensuite, à l'aide d'un détecteur rapide, les variations du signal émis. Quand le temps caractéristique de cette réponse devient court (subnanoseconde) deux difficultés apparaissent.

La première tient à ce que les détecteurs électroniques ne sont pas assez rapides. Par exemple, les photomultiplicateurs ont un temps de réponse de quelques nanosecondes et les photodiodes à avalanches environ 500 ps. Des photodiodes très rapides (temps de montée de quelques dizaines de ps) existent mais ont une faible sensibilité (facteur de gain égal à un). Au seuil de la picoseconde il n'existe plus que les caméras à balayage de fente qui soient

suffisamment rapides pour analyser ces signaux [64]. Ces difficultés peuvent être surmontées par des techniques optiques d'échantillonnage [65]. L'impulsion initiale est séparée en deux parties. L'une d'elle induit l'émission du signal tandis que l'autre déclenche la détection (impulsion référence). Le même processus est répété pour différentes valeurs du retard entre ces deux impulsions afin d'explorer la réponse sur toute sa durée. Ces techniques nécessitent toute la possibilité de reproduire le même processus d'émission jusqu'à la détermination complète de la réponse du système. Dans un certain nombre d'expériences, l'échantillonnage est réalisé par une corrélation croisée d'intensité entre le signal et la partie retardée de l'impulsion initiale. Cette corrélation peut être réalisée, par exemple, en effectuant un mélange non linéaire de ces deux impulsions dans un cristal puis en mesurant l'énergie de l'onde produite par addition de fréquence [63, 66]. Une autre technique consiste à mesurer l'énergie transmise par un obturateur à effet Kerr déclenché par l'impulsion retardée [67].

La seconde difficulté qui apparaît lors de la détermination de cette fonction réponse quand elle est brève (picoseconde ou femtoseconde) est la nécessité d'exciter le système avec des impulsions lasers courtes. La résolution temporelle ultime que l'on peut obtenir dans l'analyse des signaux est fixée par la durée des impulsions utilisées. Cette limitation peut être évitée en utilisant non plus comme on l'a supposé jusqu'à présent dans ce paragraphe des impulsions cohérentes mais des impulsions de lumière incohérente. La résolution ultime est alors fixée par le temps de corrélation, qui peut être bien plus court que la durée de l'impulsion [41]. Nous avons déjà vu au chapitre II que l'impulsion stochastique peut être considérée comme un train de  $\tau_L/\tau_c$  impulsions élémentaires cohérentes chacune mais décorrélées les unes des autres. Le signal émis est constitué alors d'une somme de signaux

élémentaires décorrélés les uns des autres, chacun d'entre eux n'étant corrélé qu'à l'impulsion élémentaire qui lui a donné naissance. Si  $\tau_c$  est plus court que le temps caractéristique de la fonction réponse, le signal élémentaire émis est proportionnel à cette fonction réponse. Cette dernière ne peut être extraite par une mesure directe de l'intensité du signal (total). En effet l'intensité totale apparaît comme la convolution de la réponse élémentaire courte avec l'enveloppe lentement variable de l'impulsion excitatrice. L'intensité totale ne fait alors plus apparaître de structures temporelles sur toute la durée de l'émission. Les différentes techniques de corrélation d'intensité (parmi lesquelles celles citées plus haut) permettent d'isoler le signal élémentaire émis. Dans ces expériences la composante utile de la corrélation (contenant l'information sur la fonction réponse) est superposée à un fond important qui réduit le rapport signal sur bruit de la méthode. Cette difficulté peut être éliminée en utilisant des techniques de corrélation de champ (ou d'amplitude) sensibles à la phase du champ. Parmi celles-ci se trouvent les techniques d'interférométrie par transformée de Fourier [68]. Elles consistent en une détection de la modulation de l'intensité qui résulte de la superposition du faisceau signal et référence et ce en fonction du retard entre ces deux faisceaux. La mesure de la transformée de Fourier de l'intensité permet d'accéder alors à la réponse du système. La difficulté de cette méthode est qu'il devient nécessaire d'effectuer un contrôle interférométrique de la différence de marche pour que celle-ci puisse être parfaitement déterminée quand on varie le retard. La technique de corrélation d'amplitude que nous avons introduite au chapitre II et IV permet aussi de réaliser un échantillonnage temporel de la fonction réponse [34, 42]. L'avantage de cette méthode est que le système de franges d'interférence qui se forme sur le détecteur (traduisant la modulation de l'intensité du champ

référence + signal en fonction du retard entre ces deux faisceaux) est obtenu pour une position fixe du montage expérimental. La détection de la modulation ne nécessite donc pas de contrôle interférométrique (ce que l'on a évité de faire lors de la mesure de la cohérence Zeeman au chapitre IV). Enfin une autre méthode de corrélation de champ, associant hétérodynage et détection synchrone, a été proposée par Wiersma et développée par Saikan [69]. Là encore un contrôle interférométrique du montage a été nécessaire.

Précisons à présent la relation qui lie la réponse du système et la quantité mesurée lorsque on effectue une corrélation d'amplitude. Le champ référence s'écrit comme :  $\mathcal{E}_r(t) \propto \mathcal{E}(t - \tau)$  , où  $\tau$  désigne le décalage temporel de l'impulsion référence par rapport à l'impulsion excitatrice. La quantité à laquelle on s'intéresse lorsqu'on effectue la corrélation d'amplitude est, d'après II-22 et V-1 :

$$\langle C \rangle(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} \langle \mathcal{E}_r^*(t) \mathcal{E}_s(t) \rangle dt \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_{-\infty}^t \langle \mathcal{E}^*(t - \tau) \mathcal{E}(t') \rangle \mathcal{R}(t - t') dt'$$

V-2

Comme le temps de corrélation du champ sonde est le temps le plus court du problème on a finalement :

$$\langle C \rangle(\tau) \propto A \mathcal{R}(\tau) \quad \text{V-3}$$

$$\text{où: } A = \int_{-\tau}^{+\infty} dx \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} \langle \mathcal{E}(t) \mathcal{E}^*(t - x) \rangle dt \right] \text{ est indépendant de } \tau \text{ dès que } \tau > \tau_L.$$

### III- EFFET KERR

#### 1)- Expresssion du signal de corrélation

Dans le cas de l'effet Kerr le système est sondé alors même qu'il est soumis au champ fort. Nous supposons que le champ sonde et le champ fort ont même durée  $\tau_L$ . Le temps de corrélation de l'impulsion sonde est  $\tau_c^{(s)}$ . La fonction réponse est donnée par la relation suivante entre le champ émis  $\mathcal{E}_e$  et le champ sonde  $\mathcal{E}_s(t)$  :

$$\mathcal{E}_e(t) = \int_{-\infty}^t \mathcal{E}_s(t') \mathcal{R}(t,t') dt' \quad \text{V-4}$$

La fonction réponse est ici une quantité stochastique dont les fluctuations dépendent de celles du champ fort. Lorsqu'on effectue la corrélation d'amplitude on a :

$$\langle C \rangle(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_{-\infty}^t \langle \mathcal{E}_s^*(t - \tau) \mathcal{E}_s(t') \mathcal{R}(t,t') \rangle dt' \quad \text{V-5}$$

le champ fort étant décorrélé du champ sonde on pose :

$$\langle \mathcal{E}_s^*(t - \tau) \mathcal{E}_s(t') \mathcal{R}(t,t') \rangle = \langle \mathcal{E}_s^*(t - \tau) \mathcal{E}_s(t') \rangle \langle \mathcal{R}(t,t') \rangle \quad \text{V-6}$$

La réponse moyenne  $\langle \mathcal{R}(t,t') \rangle$  peut s'écrire comme  $\mathbf{R}(t-t')$  dès qu'un régime stationnaire s'établit lors de l'interaction du champ fort avec le système atomique. Ce qui se réalise au bout du temps T caractéristique de



l'interaction. D'après V-5, la quantité  $\langle C \rangle(\tau)$ , mesurée lorsqu'on effectue la corrélation d'amplitude, fait intervenir tous les instants  $t'$  d'excitation du système par le champ sonde. Comme  $T \ll \tau_L$  la contribution dominante provient seulement des moments d'excitation supérieurs à  $T$  et pour lesquels le régime stationnaire est déjà atteint. On obtient alors :

$$\langle C \rangle(\tau) \propto B R(\tau) \quad \text{V-7}$$

où  $B = \langle |\mathcal{E}_s(0)|^2 \rangle \tau_L \int_{-\tau}^{+\infty} dx g_s(x)$  est indépendant de  $\tau$  dès que  $\tau$  est  $> \tau_c^{(s)}$  et

où  $g_s(x)$  est la fonction d'autocorrélation du champs sonde. L'expression de la réponse moyenne en fonction des quantités atomiques est établie en calculant le champ moyen émis en présence d'une impulsion sonde cohérente dont la durée est plus petite que les autres temps caractéristiques. Le champ émis moyen s'écrit alors d'après V-4 sous la forme :

$$\langle \mathcal{E}_e(t) \rangle = \left( \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}_s(t') dt' \right) R(t-t_1) \quad \text{V-8}$$

où  $t_1$  est l'instant tel que  $t_1 > T$  où l'impulsion sonde excite le système .

## 2)- Détermination de la fonction réponse moyenne

### a)- EVOLUTION DU SYSTEME AVANT L'INTERACTION AVEC L'IMPULSION SONDE

Nous considérons dans tout ce paragraphe un système atomique excité sur une transition  $J=0 \rightarrow J=1$ . Il est excité par une impulsion stochastique de

vecteur d'onde  $\vec{k}_p$  et dont la direction de polarisation est donnée par le vecteur unitaire  $\vec{e}_p$ . La durée  $\tau_L$  de ce champ, son temps de cohérence  $\tau_c$ , et le temps T défini à partir de la fréquence de Rabi quadratique moyenne  $\chi_p^{(0)}$  par  $T = 1/\tau_c \left( \chi_p^{(0)} \right)^2$  vérifient les inégalités suivantes :

$$\tau_c \ll T, \Delta_D^{-1} \ll \tau_L \quad \text{V-9}$$

où  $\Delta_D$  représente la largeur Doppler de l'échantillon. On choisit l'axe de quantification du système parallèle à  $\vec{e}_p$  et on remplace la base d'états propres (  $|0,0\rangle$  ;  $|1,0\rangle$  ;  $|1,1\rangle$  ;  $|1,-1\rangle$  ) par une base équivalente formée par les états :

$$\begin{aligned} |0\rangle &= |0,0\rangle ; |1\rangle = |1,0\rangle \\ |2\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|1,1\rangle - |1,-1\rangle) ; |3\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|1,1\rangle + |1,-1\rangle). \end{aligned}$$

Le système est équivalent à un système à deux niveaux  $|0\rangle - |1\rangle$  excité par le champ intense. On a vu au chapitre III, dans la représentation du vecteur de Bloch, que les moments d'ordre un des quantités atomiques relaxent vers zéro au bout d'un temps de l'ordre de T. D'où les égalités suivantes pour  $t > T$  :

$$\langle n_{10}(t) \rangle \approx \langle \rho_{01}(t) \rangle \approx \langle \rho_{01} \rangle(t) \approx 0 \quad \text{V-10}$$

De toutes les quantités atomiques qui définissent le système à trois niveaux (à savoir  $\langle n_{10} \rangle$ ,  $\langle \rho_{01} \rangle$ ,  $\langle \rho_{12} \rangle$ ,  $\langle \rho_{02} \rangle$ ,  $\langle n_{20} \rangle$ ),  $\langle n_{20} \rangle$  est la seule non nulle au bout du temps T. En tenant compte de la relation  $n_0 + n_1 = N W(\Delta)$  exprimant la conservation du nombre d'atomes, et de la relation V-10, on obtient:

$$\langle n_{20} \rangle = N \frac{W(\Delta)}{2} \quad \text{V-11}$$

b)- ACTION D'UNE IMPULSION SONDE COURTE COHERENTE

A un instant  $t_1$  durant son interaction avec le champ intense le système est sondé par une impulsion cohérente de faible intensité. Son vecteur d'onde est  $\vec{k}_s$ . L'angle  $(\vec{k}_s, \vec{k}_p)$  est supposé petit. La durée  $\tau_L^{(s)}$  de cette impulsion est plus courte que tous les autres temps caractéristiques du problème, c'est à dire que l'on a :

$$\tau_L^{(s)} \ll T, \Delta_D^{-1}, \tau_L \quad \text{V-12}$$

La direction de la polarisation est donnée par  $\vec{e}_s$  qui fait un angle de  $\pi/4$  avec le vecteur de polarisation  $\vec{e}_p$  du champ fort. L'impulsion faible sonde les deux transitions  $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$  et  $|0\rangle \rightarrow |2\rangle$  (Fig.V-2) avec d'égales forces de transition. A la sortie de l'échantillon, sur la direction du champ sonde, est placé un analyseur croisé avec lui. Le champ émis s'écrit, avant le passage par l'analyseur, sous la forme suivante :

$$\vec{E}_e \propto \int d\Delta (\rho_{01} \vec{e}_p + \rho_{02} \vec{e}_{p\perp}) e^{-i\vec{k}_s \cdot \vec{r}} \quad \text{V-13}$$

où  $\vec{e}_{p\perp}$  est un vecteur orthogonal à  $\vec{e}_p$ . Après passage par l'analyseur on aura [Fig.V-3] :

$$\vec{E}_e \propto \int d\Delta \left[ \rho_{01} (\vec{e}_p \cdot \vec{e}_{s\perp}) + \rho_{02} (\vec{e}_{p\perp} \cdot \vec{e}_{s\perp}) \right] \vec{e}_{s\perp} e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}} \quad \text{V-14}$$

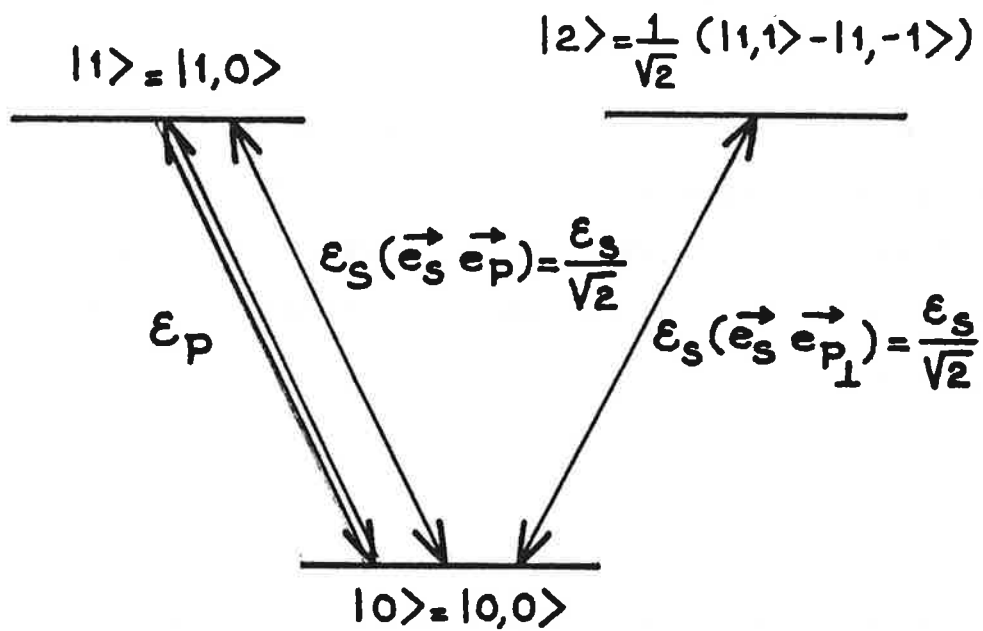


FIGURE V- 2: Transitions dans un système excité sur une transition  $J= 0 \rightarrow J= 1$  en configuration d'excitation Kerr.

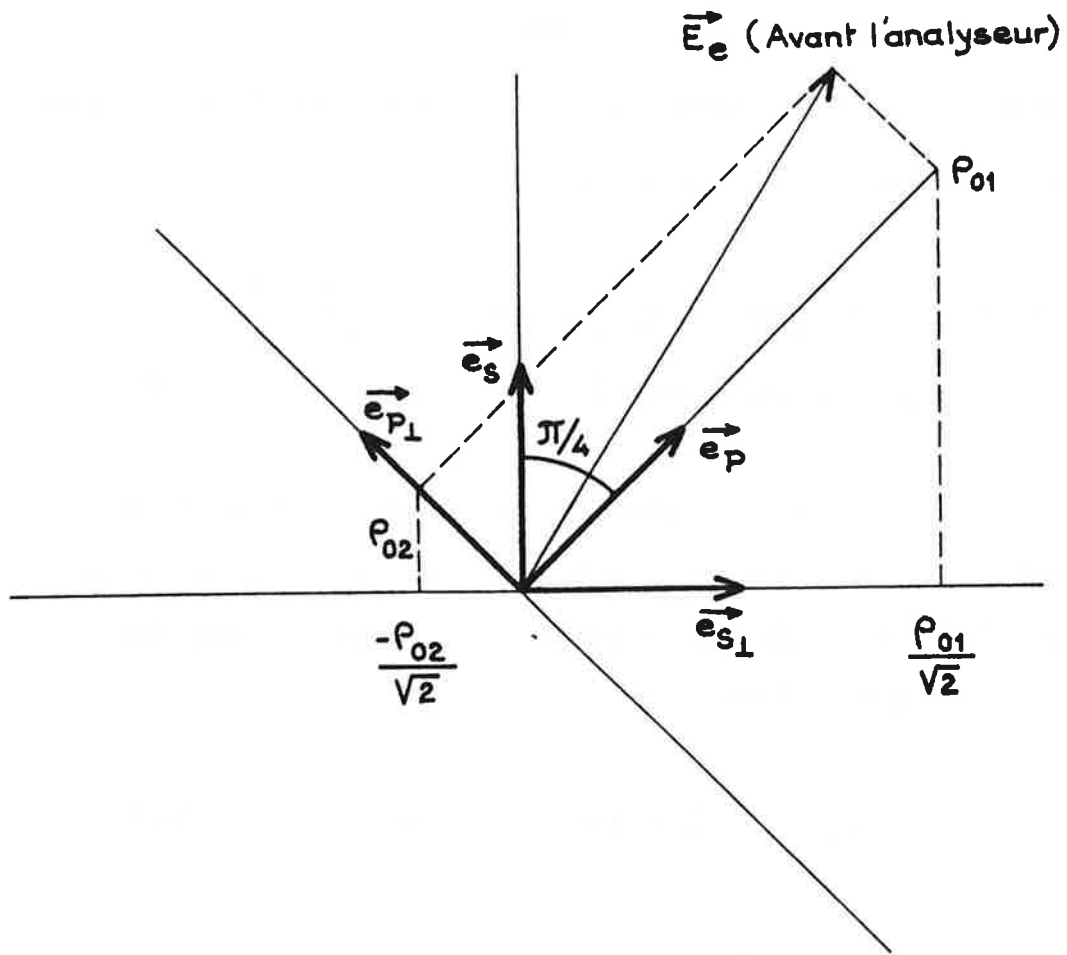


FIGURE V- 3 : Représentation géométrique des contributions au signal d'effet Kerr.

$\vec{e}_{s\perp}$  désigne un vecteur perpendiculaire à  $\vec{e}_s$  et situé dans l'axe de l'analyseur.

La valeur moyenne de ce champ s'écrit :

$$\langle \mathcal{E}_e \rangle \propto \int d\Delta \left[ \langle \rho_{01} \rangle (\vec{e}_p \cdot \vec{e}_{s\perp}) + \langle \rho_{02} \rangle (\vec{e}_{p\perp} \cdot \vec{e}_{s\perp}) \right] \quad \text{V-15}$$

$$\propto \int d\Delta (\langle \rho_{01} \rangle - \langle \rho_{02} \rangle) / \sqrt{2} \quad \text{V-16}$$

A l'ordre de perturbation le plus bas par rapport au champ faible, seule la quantité  $\langle \rho_{02} \rangle$  est non nulle car elle se construit à partir de  $\langle n_{20} \rangle = N W(\Delta)/2$ , seule quantité laissée non nulle par le champ fort. On aura juste à l'extinction du champ sonde :

$$\langle \rho_{02} \rangle = -\frac{i}{8} N W(\Delta) \int_{-\infty}^{+\infty} \chi_s(t') dt' \quad \text{V-17}$$

Où  $\chi_s$  est la fréquence de Rabi du champ sonde.

### c)- PROFIL TEMPOREL DU CHAMP EMIS APRES ACTION DU CHAMP SONDE, FONCTION REPONSE MOYENNE

Après extinction du champ sonde la cohérence  $\langle \rho_{02} \rangle$  interagit avec le champ intense. L'équation de matrice densité couple l'évolution des quantités  $\rho_{02}$  et  $\rho_{12}$  par le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} i \dot{\rho}_{02} = -\frac{\chi_p}{2} \rho_{12} - \Delta \rho_{02} \\ i \dot{\rho}_{12} = -\frac{\chi_p^*}{2} \rho_{02} \end{cases} \quad \text{V-18}$$

Où  $\chi_p$  désigne la fréquence de Rabi du champ pompe. Pour déterminer l'évolution de  $\langle \rho_{02} \rangle$  on utilise l'approximation des temps de corrélation courts (cf chap.IV, parag.II)-2 ) valable dans notre cas puisque  $\tau_c \ll T$  (V-12). On obtient alors :

$$\begin{aligned} \langle \dot{\rho}_{02} \rangle(t) &= -\frac{1}{4} \int_{-\infty}^t \langle \chi_p(t) \chi_p^*(t') \rangle dt' \langle \rho_{02}(t) \rangle + i \Delta \langle \rho_{02} \rangle \\ &\approx \left( -\frac{1}{4T} + i \Delta \right) \langle \rho_{02} \rangle(t) \end{aligned} \quad \text{V-19}$$

comme à l'instant  $t_1$  on a  $\langle \rho_{02} \rangle = -\frac{i}{8} \left( \int \chi_s(t') dt' \right) N W(\Delta)$  (cf. V-17), il vient :

$$\langle \rho_{02} \rangle(t) \approx \left( \int \chi_s(t') dt' \right) N W(\Delta) e^{-\left(\frac{1}{4T} - i \Delta\right)(t-t_1)} \quad \text{V-20}$$

et d'après V-16 on aura pour le champ émis :

$$\langle \mathcal{E}_e \rangle(t) \approx \hat{W}(t - t_1) e^{-(t-t_1)/4T} \left( \int \chi_s(t') dt' \right) \quad \text{V-21}$$

où  $\hat{W}(x) = \int W(\Delta) \exp(i \Delta x) d\Delta$  est la transformée de Fourier inverse de la fonction de distribution des décalages de fréquence Doppler. Ce terme correspond à l'interférence des rayonnements émis par des dipôles ayant des déphasages Doppler différents. Pour  $T \Delta_d < 1$ , le profil temporel du champ émis moyenné  $\langle \mathcal{E}_e \rangle$  représente l'évolution moyenne du dipôle  $\langle \rho_{02} \rangle$  sous l'action du champ intense à partir de  $t_1$  et correspond à une relaxation rapide en  $e^{-(t-t_1)/4T}$ . Par identification avec V-8 on obtient pour la fonction réponse l'expression suivante :

$$\mathbf{R}(\tau) = \hat{W}(\tau) e^{-\tau/4} \quad \text{V-22}$$

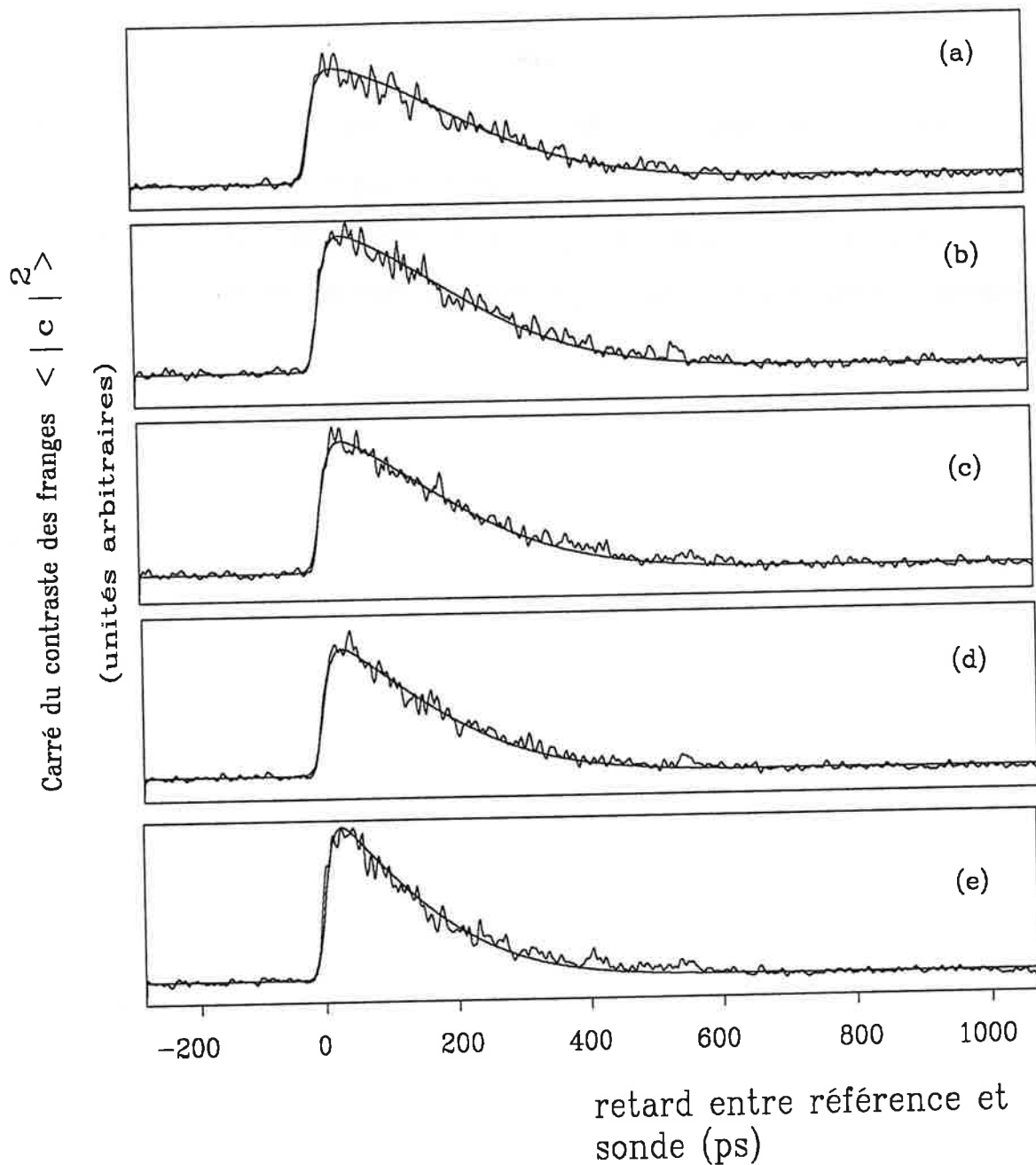
Deux remarques peuvent illustrer les propriétés particulières de la configuration d'effet Kerr retenue pour mesurer T. La première est que si l'on réalise l'expérience dans un système à deux niveaux (c'est à dire en sondant uniquement la transition  $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ ), aucun signal de corrélation ne se construit puisque la cohérence  $\langle \rho_{01} \rangle$  est nulle. Deuxièmement, puisque le signal se construit uniquement sur la cohérence  $\langle \rho_{02} \rangle$ , on pourrait penser que l'on peut se limiter à sonder uniquement la transition  $|0\rangle \rightarrow |2\rangle$ . Ceci n'est pas possible car le champ est émis dans la même direction que le champ sonde, est synchrone de ce champ et aura cette fois ci la même polarisation. Son isolation sera alors impossible à réaliser expérimentalement.

#### IV- RESULTATS EXPERIMENTAUX

L'expérience est menée dans une vapeur de strontium. On excite le système atomique sur la transition  $5s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 5s \ 5p \ ^3P_1$  à  $\lambda = 6892 \text{ \AA}$  et on a  $\Delta_D^{-1} = 235$  ps. Les deux impulsions excitatrices ont toutes deux une durée de l'ordre de 10 ns. Le champs intense a un temps de corrélation  $\tau_c = 115$  ps, pour le champ sonde on a  $\tau_c^{(s)} = 15$  ps (plus petit que les autres temps caractéristiques du problème).

Comme nous l'avons déjà fait remarquer au chapitre IV, la quantité réellement mesurée lors de la corrélation est  $\langle |C|^2 \rangle(\tau)$ , elle ne requière pas de contrôle interférométrique du montage. Nous montrons dans l'appendice 2 que pour dans les régions de puissance où l'on s'est placé expérimentalement cette quantité ne diffère pas de la quantité  $|\langle C \rangle|^2(\tau)$  à laquelle on s'est intéressé tout au long de ce chapitre. On a représenté dans les figures V-4-a) à V-4-b) les différentes courbes représentant la quantité  $\langle |C|^2 \rangle(\tau)$  en fonction du décalage  $\tau$  entre les faisceaux référence et signal. Les paramètres

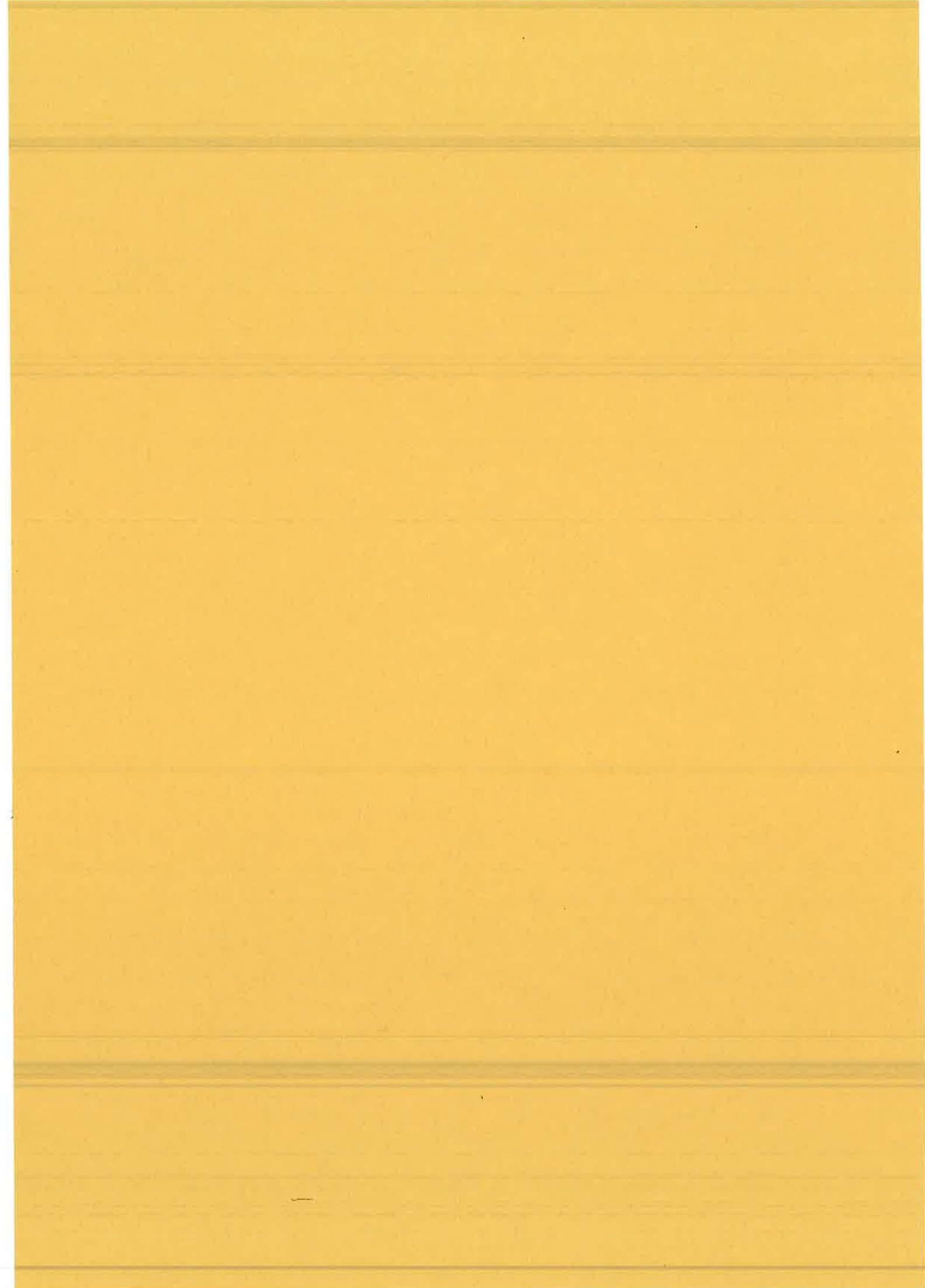




**FIGURE V- 4:** Courbes expérimentales et théoriques représentant le carré du contraste des franges obtenues par superposition des faisceaux signal et référence. Les courbes en traits lisses sont les courbes théoriques. Les paramètres de l'expérience sont  $\Delta_D = 4.3 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ ;  $\tau_C^{(s)} = 15 \text{ ps}$ ;  $T$  (ps) égal respectivement à 1000 (a); 500 (b); 300 (c); 170 (d); 115 (e). Les courbes théoriques ont été obtenues pour une fonction d'autocorrélation du champ sonde  $g(x) = 1 / \text{Ch}(\pi x / 2\tau_C^{(s)})$ . Nous rappelons que

$$\langle |C|^2 \rangle(\tau) = \left( \int_{-\tau}^{+\infty} g(x) dx \right)^2 \hat{W}^2(\tau) e^{-(\tau/2T)}$$

de l'expérience sont reportés sur les figures. Le passage du cas de la figure V-4-a) à celui de V-4-b) , montre le passage d'un régime où l'on a  $\Delta_D T > 1$  (profil demi-gaussien) à celle où  $\Delta_D T < 1$  (profil exponentiel). Ce dernier représente la relaxation du dipôle  $\langle \rho_{02} \rangle$  avec une constante de temps  $2T$ .





### CONCLUSION

Ce mémoire examine des effets induits par des champs lumineux stochastiques. Il examine la physique des processus et propose des méthodes de détection originales.

Les processus étudiés sont ceux qu'induit une séquence d'impulsions corrélées intenses dans des systèmes atomiques à deux ou trois niveaux en V. La configuration expérimentale adoptée dans nos expériences est celle du mélange à quatre ondes où une impulsion sonde est diffractée par un réseau de population (cas du système à deux niveaux) ou un réseau de cohérence Zeeman (cas du système en V) induits par les deux impulsions corrélées.

La théorie prévoit dans les deux cas que le profil du signal enregistré en fonction du décalage  $t_{12}$  entre impulsions présente des structures plus courtes que le temps de corrélation de ces impulsions. Résultat surprenant puisque ce temps de corrélation représente le paramètre temporel le plus court du problème. Ces structures sont d'autant plus étroites que la puissance des champs est plus élevée.

Nous avons observé ces structures dans le cas du système à trois niveaux. L'un des signaux observés est proportionnel à la cohérence Zeeman induite par les champs stochastiques dans le niveau supérieure de la transition. Pour le détecter nous avons mis en oeuvre une méthode originale de corrélation d'amplitude. Nous avons montré que la cohérence Zeeman n'est différente de zéro que pour un retard nul entre les deux impulsions excitatrices stochastiques intenses. Pour des impulsions se propageant en sens contraires, la condition de retard nul définit un plan. Seuls les atomes situés au voisinage de ce plan auront une cohérence Zeeman non nulle. On localise ainsi

dans l'espace des atomes préparés dans un état interne déterminé. Cette propriété pourrait être appliquée à l'analyse spatiale de la distribution des atomes dans un jet atomique.

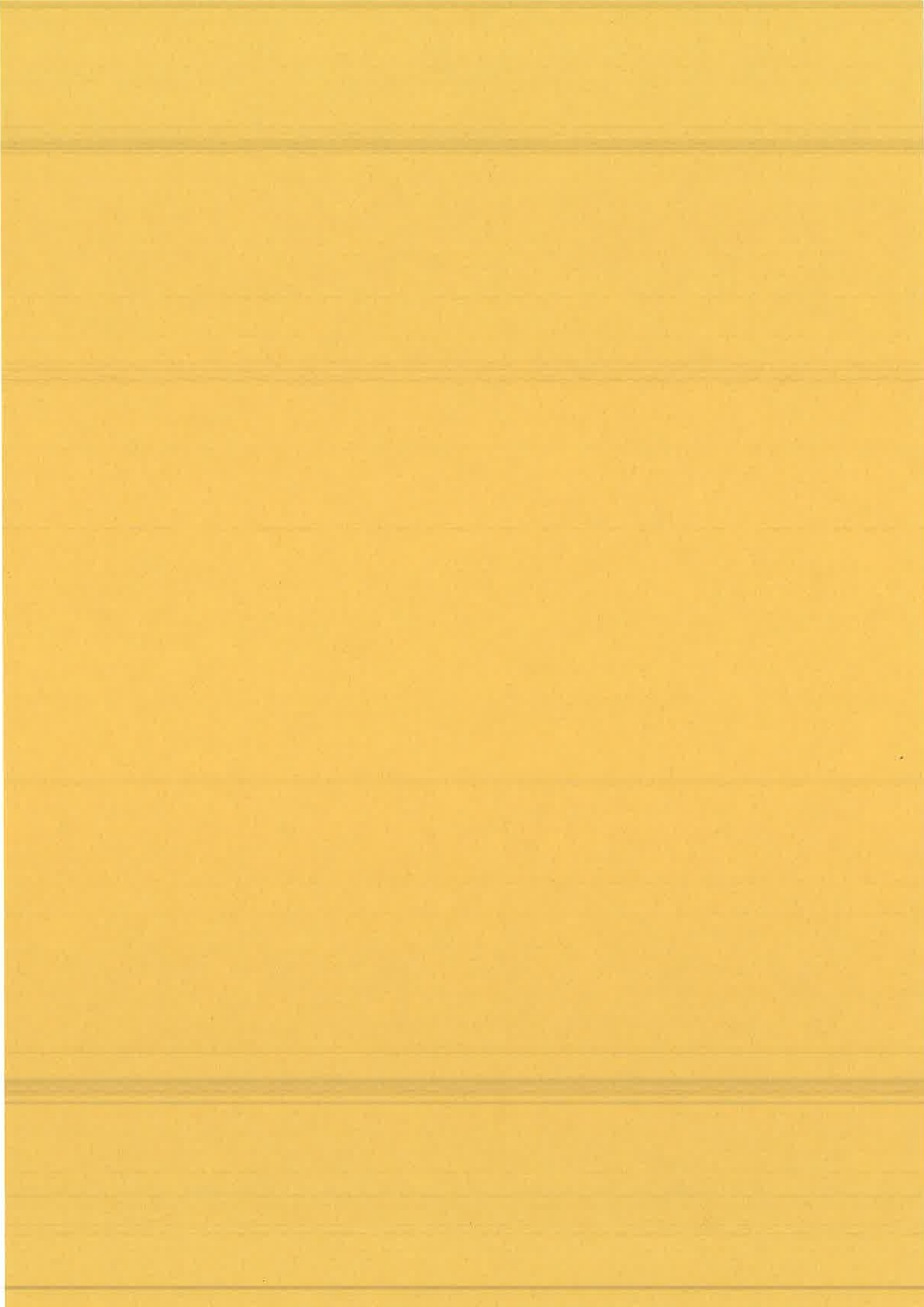
Dans toute l'étude que nous avons réalisée, nous avons supposé que la fréquence de Rabi de chacun des champs excitateurs était plus faible que la largeur spectrale de ces champs. Ceci fixe alors la limite théorique de  $\sqrt{\tau_c/\tau_L}$  au facteur de compression des structures temporelles que l'on peut observer (et à la résolution spatiale que l'on pourrait tirer de la méthode proposée). Il serait intéressant d'étendre ces études au cas où la puissance des champs est arbitraire. De plus comme on l'a fait remarquer en introduction de ce mémoire, quand la fréquence de Rabi des champs dépasse le temps de corrélation, les quantités atomiques dépendent de moments d'ordre élevé des champs et donc du modèle choisi pour décrire leurs propriétés statistiques. De telles études dans le domaine temporel n'ont pas encore été entreprises.

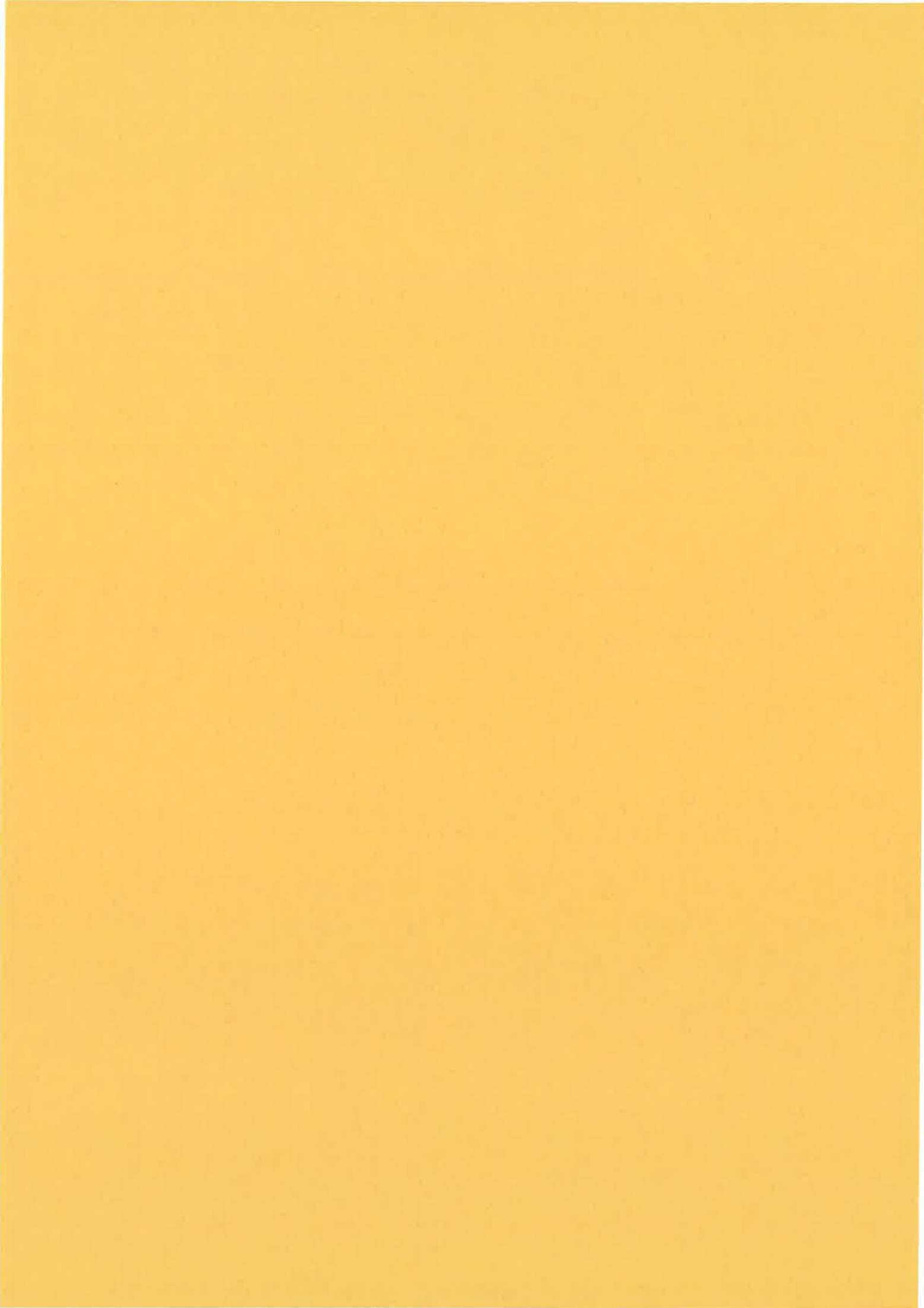
L'analyse des effets de saturation en fonction du retard entre impulsions excitatrices, est complétée par l'étude du développement du signal dans le temps. La résolution temporelle requise est obtenue par échantillonnage à l'aide du corrélateur d'amplitude. Dans la configuration d'effet Kerr on a ainsi pu mesurer le taux de relaxation des dipôles optiques induits par un champ stochastique intense. Au delà des phénomènes de saturation, cette méthode d'échantillonnage par corrélation d'amplitude nous a permis d'étudier la propagation d'une impulsion stochastique à travers un milieu optiquement épais. Le dispositif que nous avons mis au point ne nécessite pas de contrôle interférométrique de la différence de marche entre les impulsions mises en jeu. Son utilisation (en cours) a permis de mesurer des temps de relaxations de type  $T_1$  [71] et de restituer des informations binaires stockées dans un échantillon solide à basse température [72]. Enfin cette méthode d'échantillonnage peut trouver des applications en dehors du domaine de la

spectroscopie en lumière incohérente en raison de sa très large bande spectrale.









APPENDICE 1

**CORRECTION AU SIGNAL DE CORRELATION D'AMPLITUDE:  
MESURE DE LA COHERENCE ZEEMAN**

**I- QUANTITE DETECTEE PAR LE CORRELATEUR D'AMPLITUDE**

Dans le chapitre IV nous avons proposé la méthode de corrélation d'amplitude pour déterminer la valeur moyenne  $\langle \rho_{12} \rangle$  de la cohérence Zeeman induite entre les deux états supérieurs du système en V. La quantité à laquelle on s'est intéressé est  $|\langle C(t_{12}) \rangle|^2$  où  $C(t_{12})$  s'exprime en fonction du champ signal:

$$\mathcal{E}_s(t) = \int d\Delta \int_0^\infty d\tau \rho_{12}(\Delta, t_{12}) e^{i\Delta\tau} \mathcal{E}(t-\tau) \quad \text{A1-1}$$

et du champ référence  $\mathcal{E}_r(t) \propto \mathcal{E}(t-\tau)$  sous la forme :

$$C(t_{12}) = \int dt \mathcal{E}_s(t) \mathcal{E}_r^*(t) \quad \text{A1-2}$$

on obtient alors:

$$|\langle C(t_{12}) \rangle|^2 \propto \left| \int dt \int d\Delta \int_0^\infty d\tau \langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rangle e^{i\Delta\tau} \langle \mathcal{E}(t-\tau) \mathcal{E}^*(t) \rangle \right|^2 \quad \text{A1-3}$$

La dépendance en  $\Delta$  de  $\langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rangle$  se réduit d'après IV-40 à:

$$\langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rangle = \langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle W(\Delta) \quad \text{A1-4}$$

où 
$$W(\Delta) = 1 / (\sqrt{\pi} \Delta_D) e^{-(\Delta/\Delta_D)^2} \quad \text{A1-5}$$

Il s'ensuit que  $|\langle C(t_{12}) \rangle|^2$  s'écrit comme:

$$\begin{aligned} |\langle C(t_{12}) \rangle|^2 &\propto |\langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle|^2 \left\{ \int d\Delta \int_0^\infty d\tau \int dt W(\Delta) e^{i\Delta\tau} \langle \mathcal{E}(t-\tau) \mathcal{E}^*(t) \rangle \right\}^2 \\ &\propto |\langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle|^2 \end{aligned}$$

A1-6

Notre dispositif expérimental ne donne pas directement accès à  $|\langle C(t_{12}) \rangle|^2$ . La quantité détectée est  $\langle |C(t_{12})|^2 \rangle$  qui s'exprime d'après A1-1 et A1-2 sous la forme:

$$\langle |C(t_{12})|^2 \rangle \propto \int_0^\infty d\tau \int_0^\infty d\tau' A(\tau, \tau') F(\tau, \tau') \quad \text{A1-7}$$

où

$$A(\tau, \tau') = \int d\Delta \int d\Delta' \langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rho_{12}^*(\Delta', t_{12}) \rangle e^{i(\Delta\tau - \Delta'\tau')} \quad \text{A1-8}$$

$$F(\tau, \tau') = \int dt \int dt' \langle \mathcal{E}(t-\tau) \mathcal{E}^*(t) \mathcal{E}(t') \mathcal{E}^*(t'-\tau') \rangle \quad \text{A1-9}$$

Cette décomposition fait apparaître l'intégrand de l'équation A1-7 comme le produit d'un terme de corrélation atomique  $A(\tau, \tau')$  par un terme de corrélation des champs  $F(\tau, \tau')$ . Afin de préciser la structure de  $\langle |C(t_{12})|^2 \rangle$

nous calculons d'abord successivement les facteurs de corrélation atomique et de corrélation des champs.

## II- CALCUL DU FACTEUR DE CORRELATION ATOMIQUE

1)- Loi de variation de  $\langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rho_{12}^*(\Delta', t_{12}) \rangle$  en fonction de  $\Delta$  et  $\Delta'$

On pose:

$$\rho_{12}(\Delta, t_{12}) = \langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rangle + \rho_{12}^c(\Delta, t_{12}) \quad \text{A1-10}$$

En adoptant cette notation, on définit la variable aléatoire centrée  $\rho_{12}^c(\Delta, t_{12})$ . Le moment statistique d'ordre 2  $\langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rho_{12}^*(\Delta', t_{12}) \rangle$  s'écrit alors:

$$\begin{aligned} \langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rho_{12}^*(\Delta', t_{12}) \rangle &= \langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rangle \langle \rho_{12}^*(\Delta', t_{12}) \rangle \\ &+ \langle \rho_{12}^c(\Delta, t_{12}) \rho_{12}^{c*}(\Delta', t_{12}) \rangle \end{aligned} \quad \text{A1-11}$$

Nous avons déjà indiqué (A1-4) la loi de variation de  $\langle \rho_{12}(\Delta, t_{12}) \rangle$  en fonction de  $\Delta$ . Pour déterminer la dépendance en  $\Delta$  et  $\Delta'$  de  $\langle \rho_{12}^c(\Delta, t_{12}) \rho_{12}^{c*}(\Delta', t_{12}) \rangle$ , nous examinons d'abord la situation en  $t_{12} = 0$ . Seul l'état brillant  $|c\rangle$  est couplé au fondamental. Le système est équivalent à un système à deux niveaux. D'après IV-3 l'état  $|c\rangle$  s'exprime comme une combinaison linéaire des états supérieurs  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  :

$$|c\rangle = \cos\beta |2\rangle + \sin\beta |1\rangle \quad \text{A1-12}$$

où  $\text{tg}\beta$  est donné par la relation IV-2. Les amplitudes de probabilité de présence  $a_1$  et  $a_2$  dans les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  sont reliées entre elles par:

$$a_1 \cos\beta = a_2 \sin\beta \quad \text{A1-13}$$

on a donc :

$$\cos\beta \sin\beta n_c = \rho_{12} \quad \text{A1-14}$$

La différence de population entre l'état fondamental  $|0\rangle$  et l'état supérieur  $|c\rangle$  est désignée par  $n_{oc} = n_c - n_o$ . Compte tenu de l'équation de conservation  $n_c + n_o = N$ , on a:  $n_c = (n_{oc} + N)/2$ . Soit:

$$\rho_{12} = \frac{1}{4} \sin(2\beta) (n_{oc} + N) \quad \text{A1-15}$$

et

$$\rho_{12}^c = \frac{1}{4} \sin(2\beta) (n_{oc} - \langle n_{oc} \rangle) \quad \text{A1-16}$$

Il vient alors:

$$\begin{aligned} \langle \rho_{12}^c(\Delta,0) \rho_{12}^{c*}(\Delta',0) \rangle &= \frac{1}{16} \sin^2(2\beta) (\langle n_{oc}(\Delta,0) n_{oc}(\Delta',0) \rangle \\ &\quad - \langle n_{oc}(\Delta,0) \rangle \langle n_{oc}(\Delta',0) \rangle) \end{aligned} \quad \text{A1-17}$$

Dés que  $T < \tau_L$  ( $T = \frac{1}{T^{(1)}} + \frac{1}{T^{(2)}}$ ), la valeur moyenne de la différence des populations s'annule, et la fonction  $\langle \rho_{12}^c(\Delta,0) \rho_{12}^{c*}(\Delta',0) \rangle$  se comporte comme la fonction de corrélation de la différence des populations  $\langle n_{oc}(\Delta,0) n_{oc}(\Delta',0) \rangle$ . Or la dépendance en  $\Delta$  et  $\Delta'$  de cette quantité a été établie dans un article antérieur [44], elle s'écrit :

$$\langle n_{oc}(\Delta,0) n_{oc}(\Delta',0) \rangle = \langle (n_{oc}(\Delta,0))^2 \rangle W(\Delta) W(\Delta') e^{-2((\Delta - \Delta')^2 T \tau_L/3)}$$

A1-18

on obtient finalement:

$$\langle \rho_{12}^c(\Delta,0) \rho_{12}^{c*}(\Delta',0) \rangle = \langle |\rho_{12}^c(0,0)|^2 \rangle W(\Delta) W(\Delta') e^{-2((\Delta - \Delta')^2 T \tau_L/3)}$$

A1-19

La résolution numérique des équations du mouvement montre que la même variation en fonction de  $\Delta$  et  $\Delta'$  se retrouve en  $t_{12} \neq 0$ . Nous admettrons ce résultat.

## 2)- Intégration sur $\Delta$ et $\Delta'$

Après intégration sur  $\Delta$  et  $\Delta'$ , on obtient:

$$A(\tau, \tau') = \langle \rho_{12}^c(0, t_{12}) \rangle^2 A_1(\tau, \tau') + \langle |\rho_{12}^c(0, t_{12})|^2 \rangle A_2(\tau, \tau')$$

A1-20

où

$$A_1(\tau, \tau') = e^{-\Delta_D^2 (\tau^2 + \tau'^2)/4}$$

A1-21

$$A_2(\tau, \tau') = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L}} e^{-\left[ \frac{\Delta_D^2}{8} ((\tau - \tau')^2 + \frac{(\tau + \tau')^2}{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L}) \right]}$$

A1-22

Le facteur de corrélation atomique s'écrit finalement comme la somme de deux termes. Le premier s'exprime en fonction du moment statistique d'ordre 1  $\langle \rho_{12}^c(0, t_{12}) \rangle$ . Le second fait intervenir le moment statistique d'ordre 2 de la variable atomique centrée  $\rho_{12}^c(0, t_{12})$ .

### III- EXPRESSION DU FACTEUR DE CORRELATION DES CHAMPS

La fonction de corrélation se développe sous la forme d'une somme de trois termes:

$$\begin{aligned} < \mathcal{E}(t-\tau) \mathcal{E}^*(t) \mathcal{E}^*(t'-\tau') \mathcal{E}(t') > = < \mathcal{E}(t-\tau) \mathcal{E}^*(t) > < \mathcal{E}(t'-\tau') \mathcal{E}(t') > \\ + < \mathcal{E}(t-\tau) \mathcal{E}(t'-\tau') > < \mathcal{E}^*(t) \mathcal{E}(t') > + f^{(4)}(t, \tau, t+\tau'-t', t-t') \end{aligned}$$

A1-23

où  $f^{(4)}$  s'annule lorsque  $|\tau|, |\tau'|$  ou  $|t-t'|$  est supérieur au temps de cohérence  $\tau_c$  de l'impulsion sonde [70] tandis que  $< \mathcal{E}(t') \mathcal{E}^*(t'') >$  s'annule lorsque  $|t'-t''|$  est plus grand que  $\tau_c$ . Après intégration sur  $t$  et  $t'$  on obtient:

$$F(\tau, \tau') = \mathcal{E}_0^4 \tau_L^2 (g(\tau) g(\tau') + b \tau_c / \tau_L g(\tau - \tau') + c \tau_c / \tau_L g(\tau) g(\tau'))$$

A1-24

où  $b$  et  $c$  sont des facteurs numériques proches de l'unité, et  $\mathcal{E}_0^2$  et  $g(\tau)$  sont définis par:

$$\mathcal{E}_0^2 \tau_c \tau_L = \int_0^\infty d\tau \int dt < \mathcal{E}(t-\tau) \mathcal{E}^*(t) >$$

A1-25

$$g(\tau) = \int dt < \mathcal{E}(t-\tau) \mathcal{E}^*(t) > / (\mathcal{E}_0^2 \tau_L)$$

On observe que le troisième terme dans l'équation A1-24 varie comme le premier terme en fonction de  $\tau$  et  $\tau'$ . Le facteur  $\tau_c / \tau_L$  qui l'affecte permet de le négliger dans la suite du calcul.



IV- CALCUL DE  $\langle |C(t_{12})|^2 \rangle$  :

On calcule successivement

$$C_1 = \int_0^\infty d\tau \int_0^\infty d\tau' A_1(\tau, \tau') F(\tau, \tau') \quad \text{A1-26}$$

et

$$C_2 = \int_0^\infty d\tau \int_0^\infty d\tau' A_2(\tau, \tau') F(\tau, \tau') \quad \text{A1-27}$$

on obtient:

$$C_1 = \varepsilon_0^4 \tau_c^2 \tau_L^2 (1 + b \sqrt{2\pi} / \Delta_D \tau_L) \quad \text{A1-28}$$

$$C_2 = \frac{\varepsilon_0^4 \tau_c^2 \tau_L^2}{2 \sqrt{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L}} \left( 1 + b \frac{\sqrt{2\pi}}{\Delta_D \tau_L} 2 \sqrt{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L} \right)$$

A1-29

La quantité  $\langle |C(t_{12})|^2 \rangle$  s'écrit:

$$\langle |C(t_{12})|^2 \rangle = C_1 \langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle^2 + C_2 \langle |\rho_{12}^c(0, t_{12})|^2 \rangle \quad \text{A1-30}$$

Notre propos dans cet appendice est d'élucider la relation entre la quantité effectivement mesurée  $\langle |C(t_{12})|^2 \rangle$  et la quantité  $|\langle C(t_{12}) \rangle|^2$  directement reliée à la valeur moyenne de la cohérence Zeeman  $\langle \rho_{12}(t_{12}) \rangle$ . S'appuyant sur l'hypothèse  $\Delta_D \tau_c \ll 1$ , on exprime l'équation A1-6 sous la forme:

$$|\langle C(t_{12}) \rangle|^2 = (\varepsilon_0^2 \tau_c \tau_L \langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle)^2 \quad \text{A1-31}$$

En tenant compte de la relation  $\Delta_D \tau_L \gg 1$  vérifiée par nos impulsions, l'équation A1-31 s'écrit alors:

$$\langle |C(t_{12})|^2 \rangle = |\langle C(t_{12}) \rangle|^2 + \frac{\varepsilon_0^4 \tau_c^2 \tau_L^2}{\sqrt{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L}} \langle |\rho_{12}^c(0, t_{12})|^2 \rangle$$

A1-32

Il apparait que la variation en  $t_{12}$  de la quantité effectivement mesurée coïnciderait avec celle de  $|\langle C(t_{12}) \rangle|^2$  n'était une composante supplémentaire en  $\langle |\rho_{12}^c(0, t_{12})|^2 \rangle$  que nous devons évaluer.

En  $t_{12} = 0$ , on obtient à partir des équations A-15 et A-16 :

$$\langle \rho_{12}(0,0) \rangle = N/4 \quad \text{A1-33}$$

$$\langle |\rho_{12}^c(0, t_{12})|^2 \rangle = \frac{1}{16} \langle (n_{oc}(0,0))^2 \rangle \quad \text{A1-34}$$

Par ailleurs l'équipartition des trois composantes du vecteur de Bloch représentatif du système à deux niveaux équivalent conduit à [ III-17 ]:

$$\langle (n_{oc}(0,0))^2 \rangle = N^2/3 \quad \text{A1-35}$$

Finalement, on exprime  $\langle |\rho_{12}^c(0,0)|^2 \rangle$  en fonction de  $\langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle$  :

$$\langle |\rho_{12}^c(0,0)|^2 \rangle = \langle \rho_{12}(0,0) \rangle^2 / 3 = N^2/48 \quad \text{A1-36}$$

L'écart entre la quantité mesurée  $\langle |C(0)|^2 \rangle$  et celle qui nous intéresse  $|\langle C(0) \rangle|^2$  est:

$$\langle |C(0)|^2 \rangle - |\langle C(0) \rangle|^2 = \frac{N^2 \epsilon_0^4 \tau_c^2 \tau_L^2}{48 \sqrt{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L}} = |\langle C(0) \rangle|^2 \frac{1}{3 \sqrt{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L}}$$

A1-37

Lorsque  $t_{12}$  s'écarte de 0, on sait que  $\langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle$  décroît rapidement. Il n'en est pas de même pour  $\langle |\rho_{12}^c(0, t_{12})|^2 \rangle$ . Lorsque  $t_{12} \gg \tau_c$ ,  $\rho_{12}^c(0, t_{12})$  coïncide avec  $\rho_{12}(0, t_{12})$  ( puisque  $\langle \rho_{12}(0, t_{12}) \rangle = 0$  ) et on peut écrire:

$$\langle |\rho_{12}^c(0, t_{12})|^2 \rangle \approx \langle n_1(0, t_{12}) n_2(0, t_{12}) \rangle \quad \text{A1-38}$$

où  $n_1$  et  $n_2$  désignent les populations des niveaux 1 et 2. On montre [13], que la valeur de  $\langle n_1(0, t_{12}) n_2(0, t_{12}) \rangle$  est  $N^2/12$  pour  $t_{12} \gg \tau_c$ . Il vient alors:

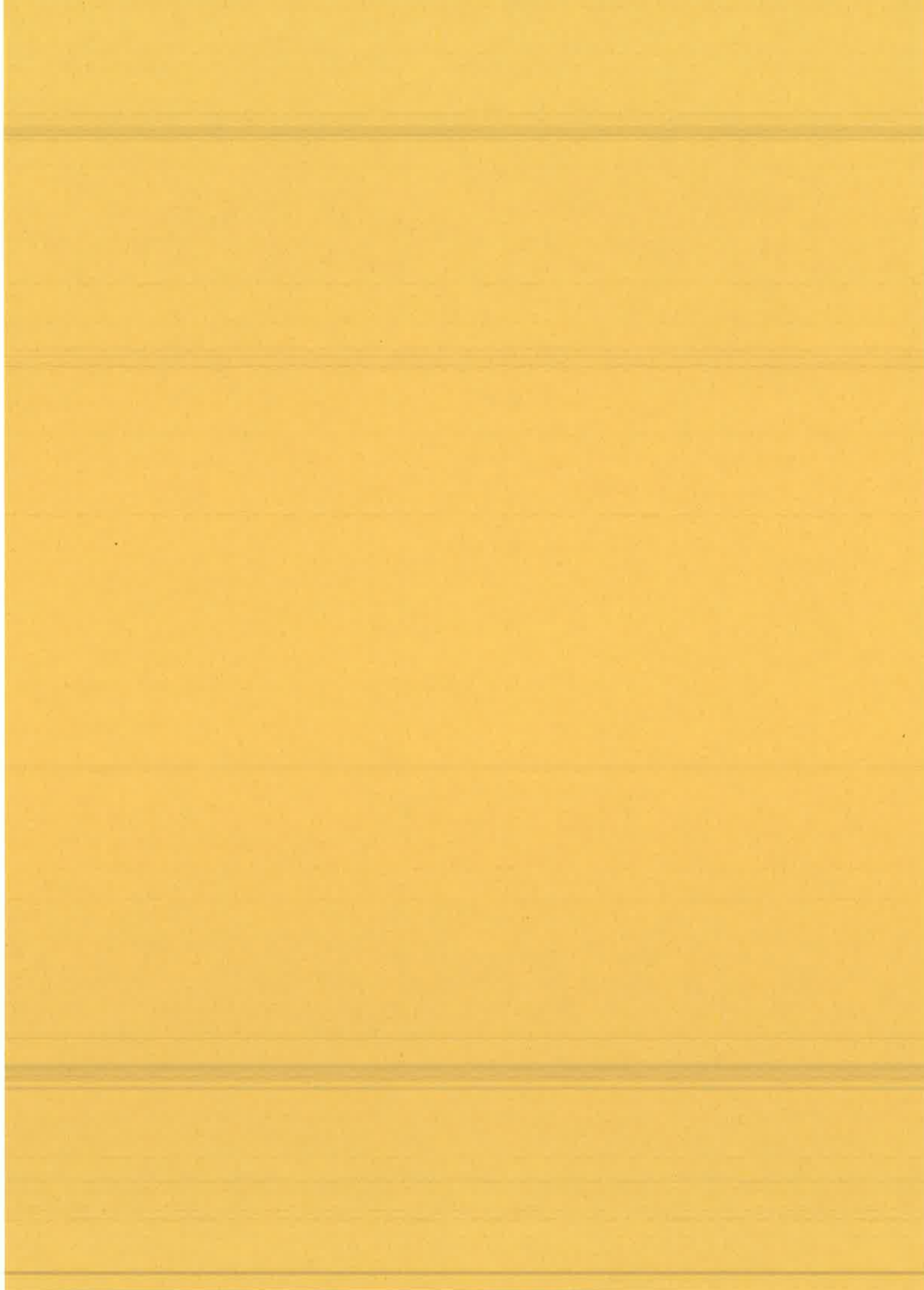
$$\langle |C(t_{12} \gg \tau_c)|^2 \rangle = \frac{N^2 \epsilon_0^4 \tau_c^2 \tau_L^2}{12 \sqrt{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L}} \quad \text{A1-39}$$

Cette contribution du terme supplémentaire est plus élevée qu'en  $t_{12} = 0$ . Elle consiste en fonction de  $t_{12}$  en un fond qui s'additionne à la composante en  $|\langle C(t_{12}) \rangle|^2$  pour donner la quantité mesurée. Si le rapport  $\frac{\langle |C(t_{12} \gg \tau_c)|^2 \rangle}{|\langle C(0) \rangle|^2}$  est petit devant 1, ce fond sera négligeable et nous pourrions alors considérer  $|\langle C(t_{12}) \rangle|^2$  comme une bonne approximation de la quantité mesurée  $\langle |C(t_{12})|^2 \rangle$ . Cette condition s'écrit finalement sous la forme:

$$\frac{\langle |C(t_{12} \gg \tau_c)|^2 \rangle}{|\langle C(0) \rangle|^2} \approx \frac{4}{3 \sqrt{1 + \frac{4}{3} \Delta_D^2 T \tau_L}} \ll 1. \quad \text{A1-40}$$

Le rapport donné dans A1-40 croît avec la puissance des champs. Dans les

conditions expérimentales où on s'est placé, il sera maximum pour  $\tau_L/\Gamma^{(1)} = \tau_L/\Gamma^{(2)} = 60$  il vient alors un rapport entre le fond et la composante utile en  $t_{12} = 0$  de 0.15 (avec  $\Delta_D \tau_L = 40$ ).





APPENDICE 2.

**CORRECTION AU SIGNAL DE CORRELATION D'AMPLITUDE:  
EFFET KERR**

**I- EXPRESSION DE LA QUANTITE MESUREE PAR LE  
CORRELATEUR**

Nous avons proposé au chapitre V la technique de corrélation croisée d'amplitude pour déterminer la fonction réponse dans le cas de l'effet Kerr en champ intense. La quantité à laquelle on s'est intéressé dans ce chapitre est  $\langle C \rangle (\tau)$  (ou encore  $|\langle C \rangle|^2(\tau)$ ) où  $C(\tau)$  est donnée par:

$$C(\tau) = \int \mathcal{E}_r^*(t) \mathcal{E}_e(t) dt \quad \text{A2- 1}$$

avec

$$\mathcal{E}_r(t) \propto \mathcal{E}(t-\tau) \quad \text{A2- 2}$$

$\mathcal{E}_e(t)$  désigne le champ émis;  $\mathcal{E}_r(t)$  le champs référence et  $\mathcal{E}(t)$  le champ sonde.  $\tau$  est le décalage temporel du champ référence par rapport au champ sonde. Cet appendice a pour objet d'établir l'écart entre la quantité  $|\langle C \rangle|^2(\tau)$  que nous cherchons à déterminer et la quantité  $\langle |C|^2 \rangle(\tau)$  qui est effectivement mesurée.

Le système est soumis au champ fort et à un champ sonde faible de vecteurs d'onde respectifs  $\vec{k}_p$  et  $\vec{k}_s$  non colinéaires. Une quantité atomique

donnée  $\rho$  se développe sous la forme  $\sum \rho^{(n\vec{k}_p + m\vec{k}_s)} e^{i(n\vec{k}_p + m\vec{k}_s)}$ . On introduit alors pour cette quantité la notation  $\rho^{(n,m)}_{(\beta, \vec{v})}$  pour désigner la composante de  $\rho$  dans la direction de  $\vec{v}$  et pris à l'ordre  $\beta$  de perturbation par rapport au champ sonde. Avec cette notation le champ émis s'exprime en fonction des quantités atomiques sous la forme suivante ( Chap.V parag.III-2)-b) ):

$$\varepsilon_e(t) \propto \int d\Delta ( \rho_{01}^{(1, \vec{k}_s)} - \rho_{02}^{(1, \vec{k}_s)} ) \quad \text{A2-3}$$

On désigne par  $\mathbf{X}$  le vecteur des quantités atomiques couplées à  $\rho_{01}^{(1, \vec{k}_s)}$  et  $\rho_{02}^{(1, \vec{k}_s)}$ . L'évolution de ce vecteur est gouverné par l'équation de la matrice densité qui se réduit dans ce cas au système suivant:

$$\dot{\mathbf{X}} = \mathbf{M} \mathbf{X} \quad \text{A2-4}$$

avec:

$$\mathbf{X} = \begin{bmatrix} \rho_{01}^{(0, \vec{k}_p)} \\ n_{10}^{(0,0)} \\ \rho_{10}^{(0, -\vec{k}_p)} \\ n_{20}^{(0,0)} \\ \rho_{12}^{(1, \vec{k}_s - \vec{k}_p)} \\ \rho_{02}^{(1, \vec{k}_s)} \\ \rho_{10}^{(1, \vec{k}_s - \vec{k}_p)} \\ n_{10}^{(1, \vec{k}_s - \vec{k}_p)} \\ \rho_{01}^{(1, \vec{k}_s)} \end{bmatrix} \quad \text{A2-5}$$

La matrice  $\mathbf{M}$  s'écrit sous la forme  $\mathbf{M} = \mathbf{M}_0 + \varepsilon(t) \mathbf{H}$ .  $\mathbf{H}$  représente la matrice



d'interaction du système avec le champ faible. Les seuls éléments non nuls de  $\mathbf{H}$  sont:

$$-\mathbf{H}_{29} = \mathbf{H}_{38} = i \mu_{01} / \hbar\sqrt{2}; \quad \mathbf{H}_{53} = \mathbf{H}_{64} = -i \mu_{01} / 2\hbar\sqrt{2} \quad \text{A2-6}$$

La matrice  $\mathbf{M}_0$  dépend du champ fort seul. Elle se décompose en blocs. Un premier bloc:

$$\begin{bmatrix} 0 & i \chi_p^* / 2 \\ i \chi_p / 2 & 0 \end{bmatrix} \quad \text{A2-7}$$

couple les quantités  $\mathbf{X}_5$  et  $\mathbf{X}_6$  pris dans cet ordre. Un second bloc:

$$\begin{bmatrix} i \Delta & -i \chi_p / 2 & 0 \\ -i \chi_p^* & 0 & i \chi_p \\ 0 & i \chi_p^* / 2 & -i \Delta \end{bmatrix} \quad \text{A2-8}$$

couple indifféremment les éléments  $\mathbf{X}_1, \mathbf{X}_2, \mathbf{X}_3$  (pris dans l'ordre) ou  $\mathbf{X}_9, \mathbf{X}_8, \mathbf{X}_7$ . Enfin les seuls éléments de la matrice  $\mathbf{M}_0$  non nuls et associés à l'évolution de  $\mathbf{X}_4$  sous l'action du champ fort sont:

$$(\mathbf{M}_0)_{14} = -i \chi_p^* / 2 \text{ et } (\mathbf{M}_0)_{34} = i \chi_p / 2. \quad \text{A2-9}$$

La résolution formelle du système A2-4 donne:

$$\mathbf{X}(\Delta, t) = \int_{-\infty}^t \mathcal{E}(t_1) \left[ \mathbf{U}(\Delta, t, t_1) \mathbf{H} \mathbf{U}(\Delta, t_1, -\infty) \mathbf{X}(\Delta, -\infty) \right] dt_1 \quad \text{A2-10}$$

où pour une classe de vitesse  $\Delta$  donnée:  $\mathbf{X}(\Delta, -\infty)$  représente les quantités atomiques avant l'excitation et  $\mathbf{U}(\Delta, t, t_1)$  la matrice d'évolution de ces quantités de  $t_1$  à  $t$  sous l'action du champ intense seul. L'expression de la quantité  $\langle |C|^2 \rangle$  mesurée par le corrélateur se réécrit alors d'après A2-1, A2-2, A2-3 et A2-10 sous la forme suivante:

$$\langle |C|^2 \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t'} dt'_1 F(t, t_1, t', t'_1) A(t, t_1, t', t'_1) \quad \text{A2-11}$$

où:

$$F(t, t_1, t', t'_1) = \langle \mathcal{E}^*(t-\tau) \mathcal{E}(t'-\tau) \mathcal{E}(t_1) \mathcal{E}^*(t'_1) \rangle \quad \text{A2-12}$$

est un facteur de corrélation du champs sonde et  $F(t, t_1, t', t'_1)$  est un facteur de corrélation atomique faisant intervenir le champ intense seul. On a:

$$A(t, t_1, t', t'_1) =$$

$$\left\langle \int_{-\infty}^{+\infty} d\Delta \int_{-\infty}^{+\infty} d\Delta' \left[ \mathbf{K}_9(\Delta, t, t_1) - \mathbf{K}_6(\Delta, t, t_1) \right] \left[ \mathbf{K}_9(\Delta', t', t'_1) - \mathbf{K}_6(\Delta', t', t'_1) \right]^* \right\rangle \quad \text{A2-13}$$

avec

$$\mathbf{K}_1(\Delta, \tau', \tau'') = \left[ \mathbf{U}(\Delta, \tau', \tau'') \mathbf{H} \mathbf{U}(\Delta, \tau'', -\infty) \mathbf{X}(\Delta, -\infty) \right]_1 \quad \text{A2-14}$$

L'indice 1 signifie qu'on considère la composante numéro 1 du vecteur compris entre crochets.

## II- EXPRESSION DU FACTEUR DE CORRELATION DU CHAMP SONDE

Le facteur de corrélation du champ sonde se développe sous la forme d'une somme de trois termes:

$$\begin{aligned} < \mathcal{E}^*(t-\tau) \mathcal{E}(t_1) > < \mathcal{E}(t'-\tau) \mathcal{E}^*(t'_1) > + < \mathcal{E}^*(t-\tau) \mathcal{E}(t'-\tau) > < \mathcal{E}(t_1) \mathcal{E}^*(t'_1) > \\ + f^{(4)}(t, t-t', t-\tau-t'_1, t-\tau-t_1) \end{aligned}$$

A2-15

où  $f^{(4)}$  est une fonction de largeur  $\tau_L$  en  $t$  et s'annule lorsque  $t-t'$ ,  $t-\tau-t'_1$  ou  $t-\tau-t_1$ , est supérieur au temps de cohérence  $\tau_C^{(s)}$  du champ sonde et  $< \mathcal{E}^*(\tau') \mathcal{E}(\tau'') >$  s'annule lorsque  $|\tau' - \tau''|$  est plus grand que  $\tau_C$ . Après intégration sur  $t'$  et  $t_1$  la quantité s'exprime comme une somme des trois termes suivants:

$$B_1 \approx (\tau_C^{(s)})^2 \alpha^2(0,0) \int_{-\tau_L/2}^{+\tau_L/2} dt \int_{-\tau_L/2}^{+\tau_L/2} dt'_1 A(t, t'_1, t, t'_1) \quad \text{A2-16}$$

$$B_2 \approx \left( \int_{-\tau}^{+\infty} dx \alpha(0,x) \right)^2 \int_{-\tau_L/2}^{+\tau_L/2} dt \int_{-\tau_L/2}^{+\tau_L/2} dt'_1 A(t, t-\tau, t'_1+\tau, t'_1) \quad \text{A2-17}$$

$$B_3 \approx (\tau_C^{(s)})^2 \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_{-\infty}^{+\infty} dt'_1 f^{(4)}(t, 0, t-\tau-t'_1, 0) A(t, t'_1, t, t'_1)$$

A2-18

avec

$$\alpha(t,x) = \langle \varepsilon^*(t-x) \varepsilon(t) \rangle \quad \text{A2-19}$$

le terme  $B_3$  est d'après la propriété de la fonction  $f^{(4)}$ ,  $\tau_c^{(s)}/\tau_L$  fois plus petit que le terme  $B_1$  et peut donc être négligé. Nous allons dans la suite évaluer les contributions des deux autres termes  $B_1$  et  $B_2$ . Nous développerons pour cela les quantités  $\langle \mathbf{K}_1(\Delta) \mathbf{K}_1^*(\Delta') \rangle$  (avec  $l,l' = 6,9$ ) qui interviennent dans l'expression de A. Remarquons que le terme  $B_1$  ne dépend pas du retard  $\tau$ . Sa contribution consiste donc en un fond constant qui se superpose à  $B_2$ . La composante utile du signal mesurée (c'est à dire  $|\langle C \rangle|^2(\tau)$ ) se trouve alors contenue dans ce dernier terme  $B_2$ .

### III- EVALUATION DU TERME $B_1$

#### 1)- Expression du terme $\langle \mathbf{K}_1(\Delta) \mathbf{K}_1^*(\Delta') \rangle$

Le terme  $\langle \mathbf{K}_1(\Delta) \mathbf{K}_1^*(\Delta') \rangle (t, t')$  se développe sous la forme suivante (Figure A2-1) :

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{K}_1(\Delta) \mathbf{K}_1^*(\Delta') \rangle (t,t') &= \sum_{i,j,k,m,n,p} \langle \mathbf{U}_{ik}(\Delta, t, t') \mathbf{H}_{kj} \mathbf{U}_{ji}(\Delta, t', -\infty) \mathbf{X}_i(\Delta, -\infty) \\ &\times \mathbf{U}_{1'p}^*(\Delta', t, t') \mathbf{H}_{pn}^* \mathbf{U}_{nm}^*(\Delta', t', -\infty) \mathbf{X}_m^*(\Delta', -\infty) \rangle \end{aligned}$$

A2-20

les différents éléments  $\mathbf{U}_{\mp}$  peuvent être regroupés suivant les instants entre lesquels ils sont évalués. En effet puisque le temps T d'évolution du système atomique sous l'action du champ fort vérifie  $T > \tau_c$ , l'approximation des temps

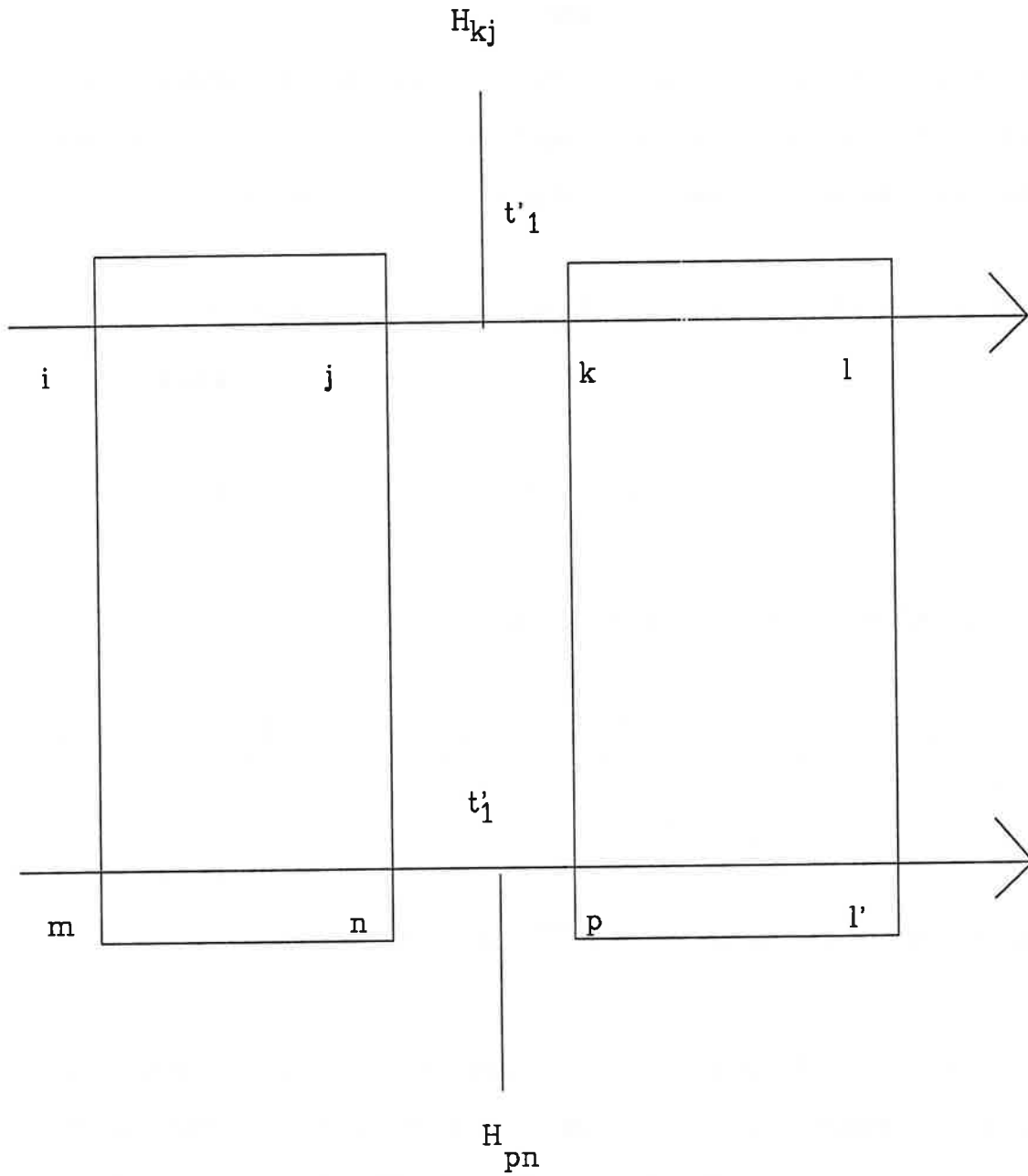


Figure A2-1: Schéma représentant le terme  $B_1$

Le système évolue le long de deux axes de temps. Les rectangles symbolisent l'interaction avec le champ intense. Le champ sonde interagit en  $t'_1$  avec le système (traits verticaux)

de corrélations courts est valable. Elle exprime la décorrélation entre l'évolution du système atomique jusqu'à un instant  $t'$  et l'évolution antérieure à cet instant. Ceci nous permet d'écrire alors pour tout  $r,p,r',p'$ :

$$\langle U_{rp}(\tau''', \tau'') U_{r'p'}(\tau'', \tau') \rangle = \langle U_{rp}(\tau''', \tau'') \rangle \langle U_{r'p'}(\tau'', \tau') \rangle$$

A2-21

avec

$$\tau''' > \tau'' > \tau'$$

A2-22

L'expression A2-20 se réécrit sous la forme suivante:

$$\sum_{i,j,k,m,n,p} \langle U_{ik}(\Delta, t, t_1) U_{l'p'}^*(\Delta', t, t_1) \rangle H_{kj} H_{pn}^* \langle U_{ji}(\Delta, t_1, -\infty) U_{nm}^*(\Delta', t_1, -\infty) \rangle$$

$$\times X_i(\Delta, -\infty) X_m^*(\Delta', -\infty)$$

A2-23

## 2)- Evaluation des termes $\langle U_{rp}(\Delta) U_{r'p'}^*(\Delta') \rangle$ et résultats

Les éléments  $\langle U_{rp}(\Delta) U_{r'p'}^*(\Delta') \rangle$  représentent les éléments de matrice de l'opérateur d'évolution  $\langle \hat{U} \rangle$  du tenseur  $\langle X(\Delta) \otimes X^*(\Delta') \rangle$  formé par les moments d'ordre 2 des quantités atomiques. On peut montrer à partir de l'équation A2-4 et en tenant compte de l'approximation des temps de corrélation courts que ce tenseur obéit à l'équation différentielle linéaire suivante [44]:

$$\frac{d}{dt} \langle X'(\Delta, t) \otimes X'^*(\Delta', t) \rangle = N_0 \langle X'(\Delta, t) \otimes X'^*(\Delta', t) \rangle$$

A2-24

où

$$\mathbf{X}'(\Delta, t) = e^{-\langle \mathbf{M}_0 \rangle t} \mathbf{X}(\Delta, t) \quad ; \quad \mathbf{N}_0 = \int_0^t dt' \langle \mathbf{M}_0'(t) \mathbf{M}_0'(t') \rangle$$

$$\mathbf{M}_0'(t) = e^{-\langle \mathbf{M}_0 \rangle t} \mathbf{M}_0(t) e^{\langle \mathbf{M}_0 \rangle t} \quad \text{A2-25}$$

Le fait que  $\mathbf{M}_0$  se subdivise en plusieurs blocs permet de subdiviser aussi le tenseur  $\mathbf{N}_0$  (de dimension 81 par 81) en divers blocs, ce qui simplifie considérablement le calcul des éléments  $\langle \mathbf{U}_{r,p}(\Delta) \mathbf{U}_{r',p'}^*(\Delta') \rangle$ . De plus le nombre de ces éléments à calculer se réduit en tenant compte du fait que les seuls éléments  $\mathbf{X}_i(\Delta, -\infty) \mathbf{X}_m^*(\Delta', -\infty)$  non nuls dans A2-13 sont ceux obtenus pour  $i, m = 2$  ou  $4$ . La résolution du système d'équations différentielles à l'intérieur d'un sous espace donné (associé à un bloc de  $\mathbf{N}_0$ ) se fait par la méthode de la transformée de Laplace. Il serait trop fastidieux de développer ici les calculs que nous avons effectué. Aussi nous nous limiterons à donner les résultats que nous avons obtenus à l'issue du calcul. Ainsi dans la région de puissance où l'on a  $\Delta_D^2 T \tau_L > 1$  la contribution de  $\langle \mathbf{K}_9(\Delta) \mathbf{K}_9^*(\Delta') \rangle$  au terme  $B_1$  est après intégration sur les classes de vitesse  $\Delta, \Delta'$  et sur  $t$  et  $t'$ :

$$\sqrt{3} (\tau_c^{(s)})^2 \alpha^2(0,0) / 27 \sqrt{\Delta_D^2 T \tau_L} \quad \text{A2-26}$$

la contribution de  $\langle \mathbf{K}_6(\Delta) \mathbf{K}_6^*(\Delta') \rangle$  vaut au maximum (quand  $\Delta_D^2 T \tau_L = 1$ ):

$$\sqrt{2\pi} (\tau_c^{(s)})^2 \alpha^2(0,0) / (3 \Delta_D \tau_L) \quad \text{A2-27}$$

les deux autres contributions  $\langle \mathbf{K}_6(\Delta) \mathbf{K}_9^*(\Delta') \rangle$  et  $\langle \mathbf{K}_9(\Delta) \mathbf{K}_6^*(\Delta') \rangle$  sont affectées d'un facteur de l'ordre de  $(\chi_s^{(0)} / \chi_p^{(0)})^2$  par rapport aux deux autres

et peuvent ainsi être négligées. Le terme  $B_1$  s'obtient en sommant les deux termes A2-26 et A2-27.

#### IV- EVALUATION DU TERME $B_2$ :

##### 1)- Expression du terme $\langle K_1(\Delta) K_1^*(\Delta') \rangle$

Le terme  $\langle K_1(\Delta) K_1^*(\Delta') \rangle$  se développe sous la forme suivante (Figure A2-2) :

$$\begin{aligned} \langle K_1(\Delta) K_1^*(\Delta') \rangle &= \sum_{i, j, k, m, n, p} \langle U_{ik}(\Delta, t, t-\tau) H_{kj} U_{ji}(\Delta, t-\tau, -\infty) X_i(\Delta, -\infty) \\ &\times U_{1'p}^*(\Delta', t'_1 + \tau, t'_1) H_{pn}^* U_{nm}^*(\Delta', t'_1, -\infty) X_m^*(\Delta', -\infty) \rangle \end{aligned} \quad \text{A2-28}$$

Pour effectuer ici un regroupement des termes  $U_{np}$  analogue à celui réalisé au III, nous réécrivons A2-28 sous la forme suivante d'une somme  $D_1 + D_2 + D_3$  où les termes  $D_1$ ,  $D_2$  et  $D_3$  correspondent à une sommation sur  $t'_1$  dans  $B_1$  limité respectivement de  $-\tau_L/2$  à  $t-2\tau$ ,  $t-2\tau$  à  $t$  et  $t$  à  $\tau_L/2$ . Tant que  $\tau \ll \tau_L$ , le terme  $D_2$  est négligeable par rapport aux deux autres et on peut montrer que les contributions de  $D_1$  et  $D_3$  sont égales. On a finalement  $B_2 \approx 2 D_1$ . En utilisant alors l'approximation des temps de corrélation courts le terme A2-28 s'écrit alors sous la forme suivante:

$$\begin{aligned} \langle K_1(\Delta) K_1^*(\Delta') \rangle &= \sum_{f, g, i, j, k, m, n, p} \langle U_{ik}(\Delta, t, t-\tau) \rangle \langle U_{jf}(\Delta, t-\tau, t'_1 + \tau) \rangle \\ &\langle U_{fg}(\Delta, t'_1 + \tau, t'_1) U_{1'p}^*(\Delta', t'_1 + \tau, t'_1) \rangle H_{kj} H_{pn}^* \langle U_{gi}(\Delta, t'_1, -\infty) U_{nm}^*(\Delta', t'_1, -\infty) \rangle \\ &X_i(\Delta, -\infty) X_m^*(\Delta', -\infty) \end{aligned} \quad \text{A2-29}$$



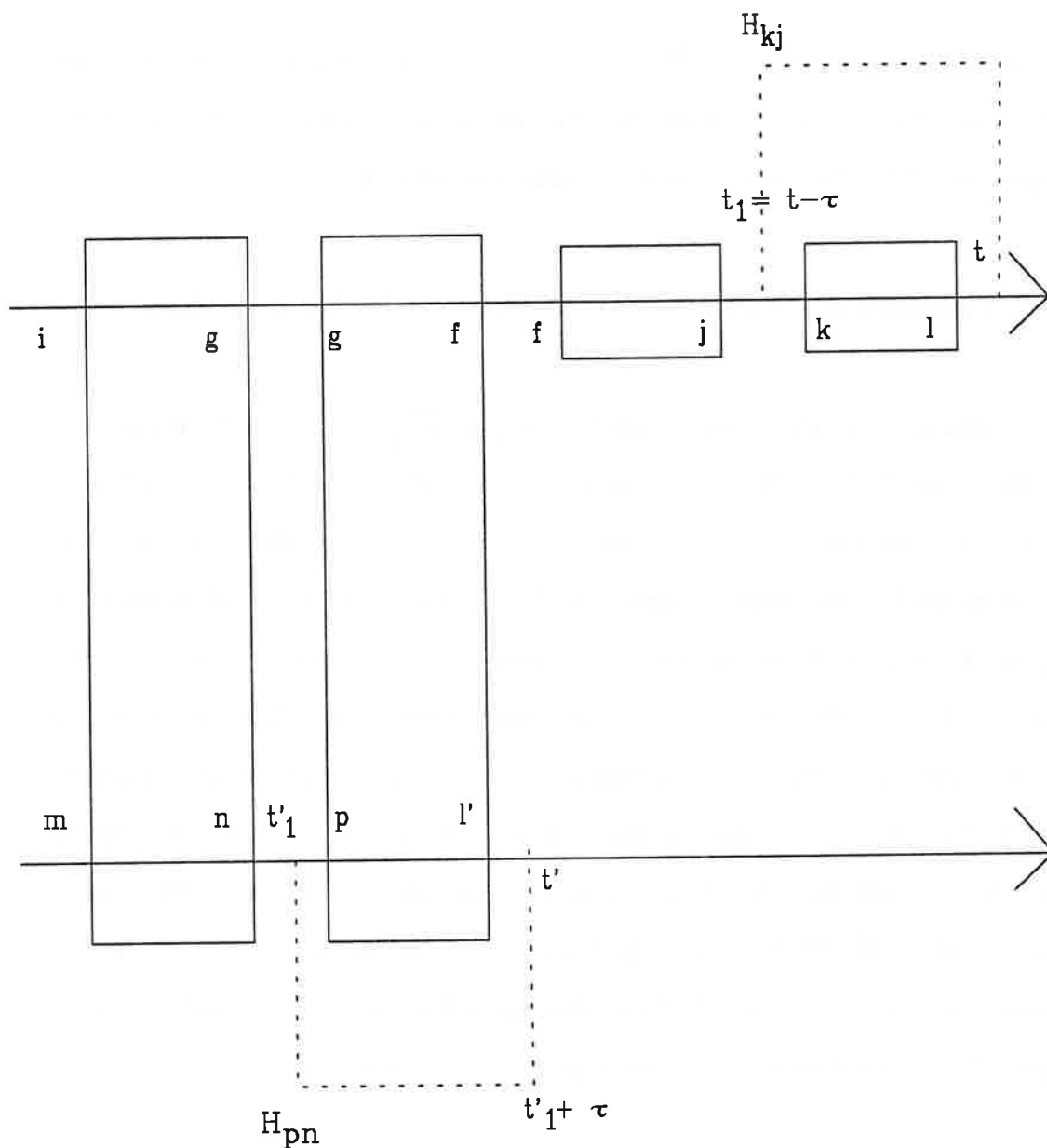


Figure A2-2: Shéma représentant le terme  $B_2$

Le système évolue le long de deux axes de temps. Les rectangles symbolisent l'interaction avec le champ intense. Le champ sonde interagissant en  $t' - \tau$  et en  $t - \tau$  avec le système. Les lignes pointillées représentent la corrélation entre le signal émis en  $t$  (respec.  $t'$ ) et le champ sonde qui lui a donné naissance en  $t - \tau$  (respec.  $t' - \tau$ ).

On constate que le terme  $\langle \mathbf{K}_1(\Delta) \mathbf{K}_1^*(\Delta') \rangle$  fait intervenir, en plus des éléments de la matrice d'évolution des moments d'ordre 2 des quantités atomiques, les éléments d'évolution des moments d'ordre un.

## 2)- Evaluation des termes $\langle \mathbf{U}_{rp}(\Delta) \mathbf{U}_{r,p}^*(\Delta') \rangle; \langle \mathbf{U}_{rp}(\Delta) \rangle$ et résultats

Le principe du calcul des éléments  $\langle \mathbf{U}_{rp}(\Delta) \mathbf{U}_{r,p}^*(\Delta') \rangle$  est le même que celui donné au III-2). Celui des moments d'ordre un a été effectué au chapitre V. Nous ne donnerons pas le détail des calculs. Les résultats donnent une contribution négligeable pour les termes  $\langle \mathbf{K}_6(\Delta) \mathbf{K}_9^*(\Delta') \rangle$ ,  $\langle \mathbf{K}_9(\Delta) \mathbf{K}_6^*(\Delta') \rangle$  et  $\langle \mathbf{K}_9(\Delta) \mathbf{K}_9^*(\Delta') \rangle$ . Pour ce dernier le résultat se comprend bien. En effet d'après A2-29 les éléments  $\langle \mathbf{U}_{if} \rangle$  qui interviennent dans l'expression de ce terme sont ceux qui décrivent l'évolution des moments d'ordre un des quantités atomiques dans le système réduit à deux niveaux  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ . Or on a déjà vu au chapitre V que ces moments s'annulaient tous au bout du temps T. Finalement seul le terme  $\langle \mathbf{K}_6(\Delta) \mathbf{K}_6^*(\Delta') \rangle$  peut être considéré comme non nul. Il fait intervenir les moments un et deux des quantités atomiques couplées à la quantité  $\rho_{02}^{(1, \vec{k}_s)}$ . Sa valeur est pour des régions de puissance où  $\Delta_D^2 T \tau_L > 1$ :

$$e^{-\tau/2T} \hat{W}^2(\tau) + \frac{32\sqrt{3}}{81 \pi} \frac{(e^{-\tau/2T} - e^{-2\tau/T})}{\sqrt{\Delta_D^2 T \tau_L}} \quad \text{A2-30}$$

On reconnaît dans le premier membre la contribution du terme  $|\langle C \rangle|^2$ . Le second membre représente un écart supplémentaire de  $\langle |C|^2 \rangle$  par rapport à  $|\langle C \rangle|^2$ . Il est à noter que ce terme dépend du décalage  $\tau$  et ne constitue pas donc un fond constant comme cela est le cas pour  $B_1$ .

**V- DISCUSSION**

L'expression finale du signal de corrélation mesuré est d'après A2-16, A2-17, A2-26, A2-27, A2-30 :

$$\left( \tau_L \int_{-\tau}^{+\infty} dx \alpha(0,x) \right)^2 \left( e^{-\tau/2T} \hat{W}^2(\tau) + \frac{32\sqrt{3}}{81 \pi} \frac{(e^{-\tau/2T} - e^{-2\tau/T})}{\sqrt{\Delta_D^2 T \tau_L}} \right) + (\tau_c^{(s)})^2 \tau_L^2 \alpha^2(0,0) \left( \sqrt{3} / 27\sqrt{\Delta_D^2 T \tau_L} + \sqrt{2\pi} / 3 \Delta_D \tau_L \right)$$

A2-31

de sorte que le rapport  $\frac{<|C|^2>(\tau) - |<C>|^2(0)}{|<C>|^2(0)}$  est inférieur à:

$$\left( \frac{32\sqrt{3}}{81 \pi} + \frac{\sqrt{3}}{27} \right) \frac{1}{\sqrt{\Delta_D^2 T \tau_L}} + \sqrt{2\pi} / 3 \Delta_D \tau_L$$

A2-32

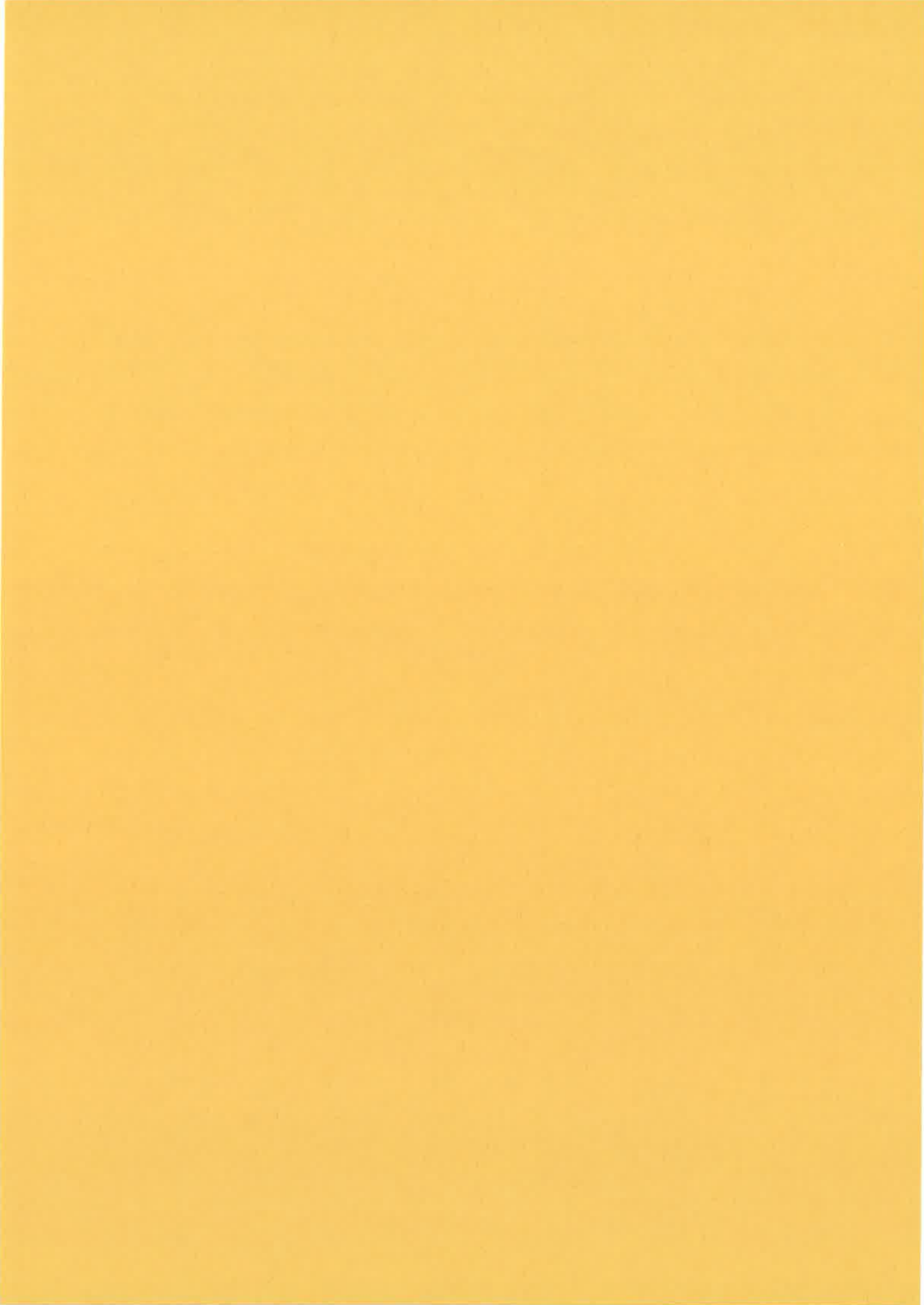
Il sera négligeable si les termes  $\Delta_D^2 T \tau_L$  et  $\Delta_D \tau_L$  sont suffisamment élevés. Dans ce cas il est légitime de considérer la quantité  $<|C|^2>(\tau)$  mesurée par le corrélateur comme une bonne approximation de la quantité  $|<C>|^2(\tau)$ . Le rapport donné plus haut est une fonction croissante de la puissance des champs et sera maximum dans nos expériences pour le cas où on a  $\tau_L/T = 91$ . Il vient alors une valeur limite de 0.01 pour ce rapport ( $\Delta_D \tau_L = 40$ ) c'est à dire:

$$\frac{<|C|^2>_{MAX} - |<C>|^2(0)}{|<C>|^2(0)} < 0.01$$

A2-33







REFERENCES

- [1] L.D. ZUSMAN, A.I. BURSHTAIN  
Sov. Physics J.E.T.P. Vol. 34, 520, (1972)
  
- [2] P. ZOLLER, G. ALBER, R. SALVADOR  
Phys. Rev. A. Vol 24, 398 (1981)
  
- [3] P. AVAN, C. COHEN-TANOUDJI  
J. Phys. B: At. Mol. Phys. Vol. 10, 155 (1977)
  
- [4] T.H. HASLWANTER, H. RITSCH, J. COOPER, P. ZOLLER  
Phys. Rev. A. Vol 38, 5652 (1988)
  
- [5] H. RITSCH, P. ZOLLER, J. COOPER  
Phys. Rev. A. Vol 41, 2653 (1990)
  
- [6] M.H. ANDERSON, R.D. JONES, J. COOPER, S.J. SMITH, D.S. ELLIOT, H. RITSCH, P. ZOLLER  
Phys. Rev. A. Vol 42, 6690 (1990)
  
- [7] P. ZOLLER  
Phys. Rev. A. Vol 19, 1151 (1979)
  
- [8] G. LECOMPTE, G. MAINFRAY, C. MANUS, F. SANCHEZ  
Phys. Rev. Lett. Vol 32, 265 (1974)
  
- [9] G. LECOMPTE, G. MAINFRAY, C. MANUS, F. SANCHEZ  
Phys. Rev. A. Vol 11, 1009 (1975)
  
- [10] P.B. HOGAN, S.J. SMITH, A.T. GEORGES, P. LAMBROPOULOS  
Phys. Rev. Lett. Vol 41, 229 (1978)
  
- [11] G. ALBER, J. COOPER, P. EWART  
Phys. Rev. A. Vol 31, 2344 (1985)
  
- [12] J. COOPER, A. CHARLTON, D.R. MEACHER, P. EWART, G. ALBER  
Phys. Rev. A. Vol 40, 5705 (1989)

- [13] P. TCHENIO, A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET  
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 5, 1293 (1988)
- [14] P. TCHENIO, A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET  
Phys. Rev. A. Vol 39, 1970 (1989)
- [15] P. TCHENIO, A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET  
Phys. Rev. Lett. Vol 62, 415 (1989)
- [16] R. FRIEDBERG, S.R. HARTMANN  
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. Vol. 21, 683 (1988)
- [17] K. GHERI, M.A. MARTE, P. ZOLLER  
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 8, 1559 (1991)
- [18] V. FINKELSTEIN, P.R. BERMAN  
Phys. Rev. A. Vol 41, 6193 (1990)
- [19] V. FINKELSTEIN, P.R. BERMAN  
Phys. Rev. A. Vol 42, 3145 (1990)
- [20] V. FINKELSTEIN  
Phys. Rev. A. Vol 43, 4901 (1991)
- [21] Laser physics  
M.SARGENT, M.O. SCULLY, W.E. LAMB  
Addison-Wesley Publishing Compagny (1974)
- [22] M. D. Crisp  
Phys. Rev. A. Vol. 6, 1604 (1970)
- [23] Optical Resonance and two level atoms  
L. ALLEN, J. H. EBERLY  
Wiley interscience Publication (1975)
- [24] Classical electrodynamics  
J. D. JACKSON  
Wiley interscience publication (1975)
- [25] M. DEFOUR, Thèse de doctorat, Orsay(1986)

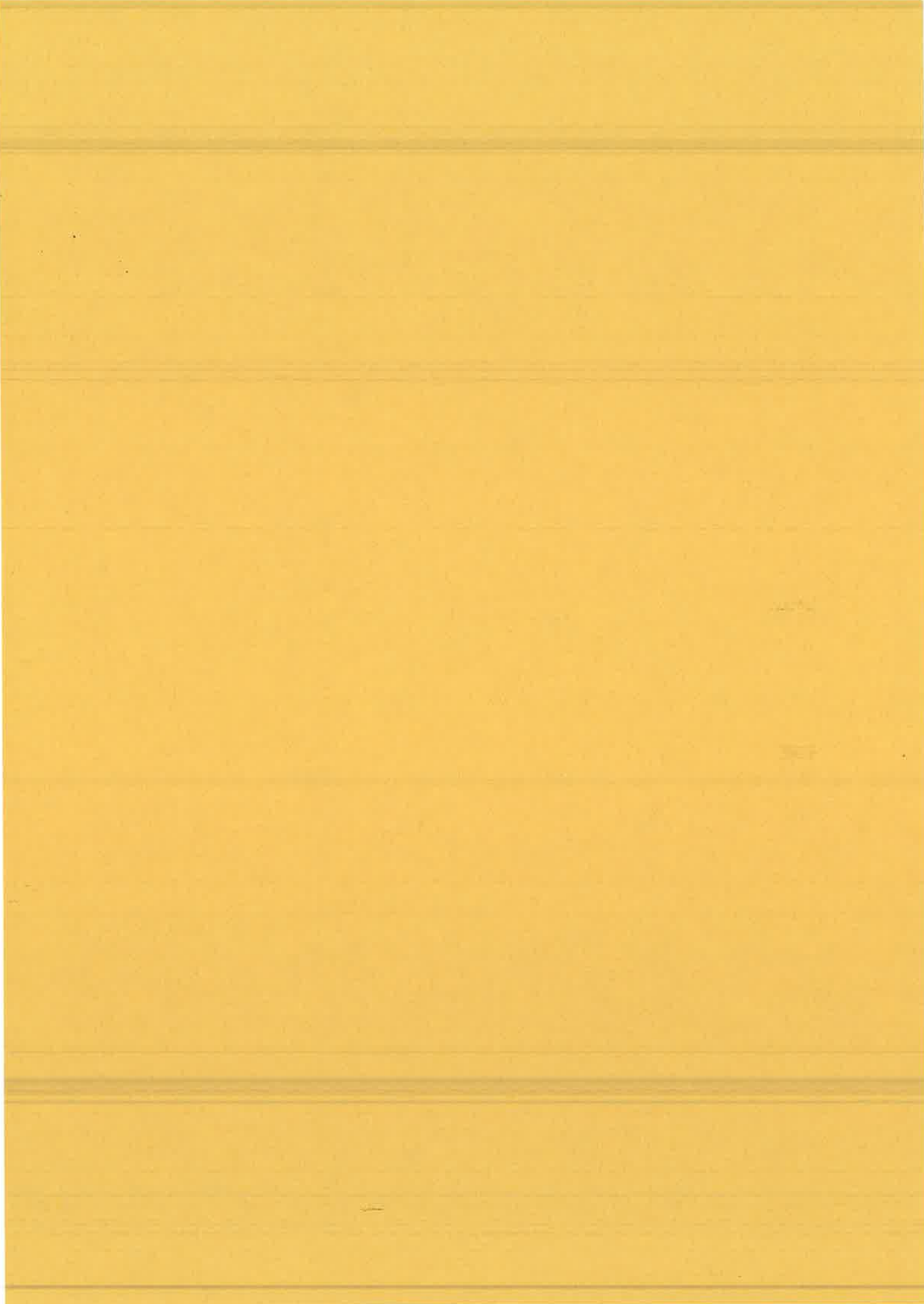


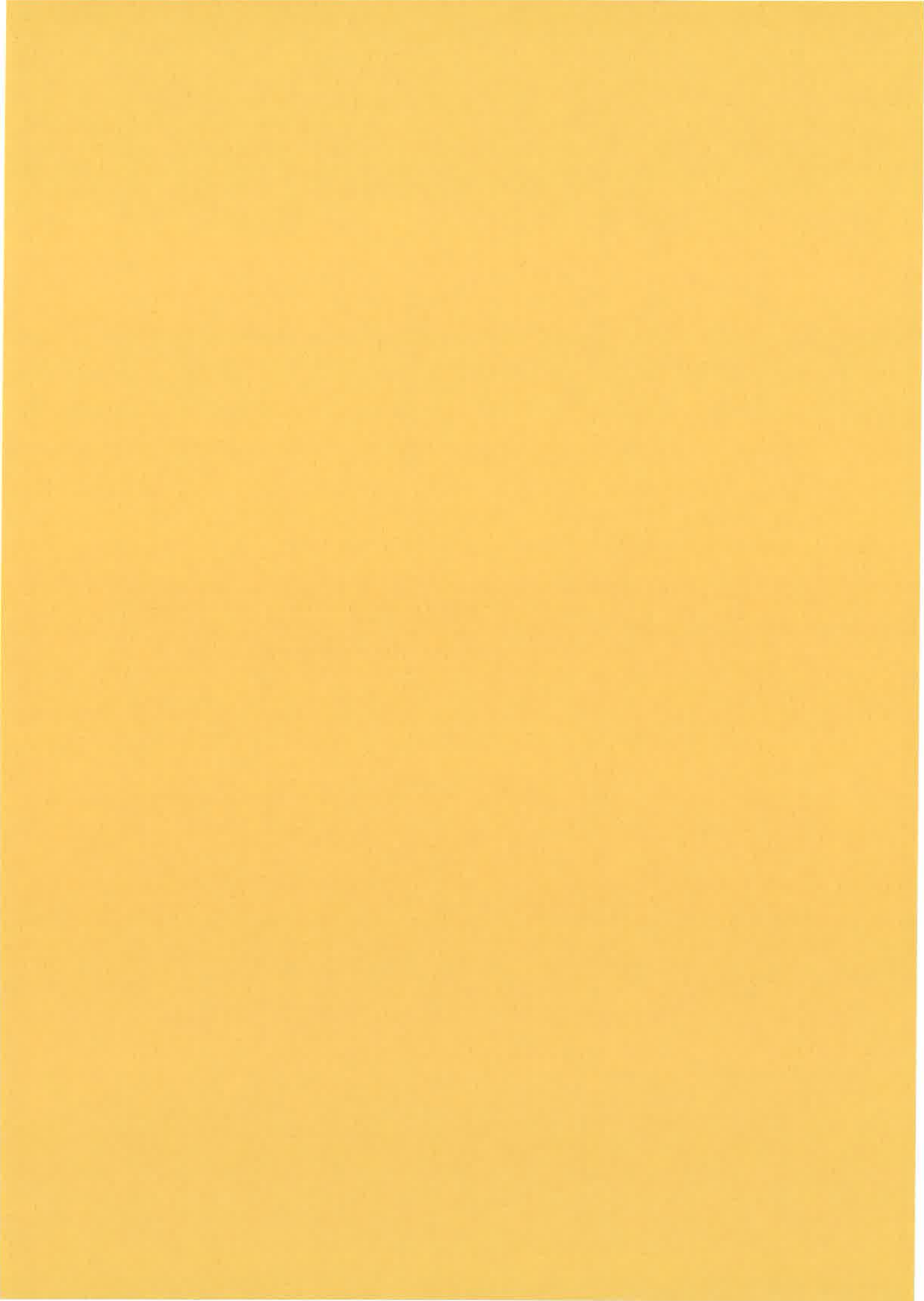
- [26] The principles of non linear optics  
Y. R. SHEN  
Wiley interscience publication (1984)
- [27] P. TCHENIO, Thèse de doctorat, Orsay(1989)
- [28] Laser induced dynamic gratings  
H.J. EICHLER, P. GUNTER, D.W. POHL  
Springler-Verlag. Berlin, Heidelberg, New-York, Tokyo (1986)
- [29] N.A. KURNIT, I.D. ABELLA, S.R. HARTMANN  
Phys. Rev. Lett. Vol. 13, 567 (1964)
- [30] W.H. HESSELINK, M.A. WIERSMA  
Phys. Rev. Lett. Vol. 43, 1991 (1979)
- [31] M. FUJITA, H. NAKATSUKA, H. NAKANISHI, M. MATSUOKA  
Phys. Rev. Lett. Vol 42, 974 (1979)
- [32] F. CHARRA, Thèse de doctorat, Orsay (1990)
- [33] A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET, A. RICHARD,  
P. TCHENIO  
Optics Commun. Vol. 73, No 4, 309 (1989)
- [34] A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET, P. TCHENIO  
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 8, No. 1, 153 (1991)
- [35] The Quantum theory of light  
R. LOUDON  
Oxford science publications (1986)
- [36] C. RADZEWICZ, Z.W. LI, M.G. RAYMER  
Phys. Rev. A. Vol 37, No 6 (1988)
- [37] M. DEFOUR, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET  
Phys. Rev. A. Vol 36, No 11 (1987)
- [38] K. KUROKAWA, T. HATTORI, T. KOBAYASHI  
Phys. Rev. A. Vol 36, No 3 (1987)

- [39] Statistical Optics  
J.W. GOODMAN  
Wiley interscience publication (1985)
- [40] M. DEFOUR, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET  
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 3, No. 4, 544 (1986)
- [41] N. MORITA, T. YAJIMA  
Phys. Rev. A. Vol 30, No 5 (1984)
- [42] M.A. BOUCHENE, A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET,  
P. TCHENIO  
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 9, No. 4, 281 (1992)
- [43] Principle of Optics  
M. BORN, E. WOLF  
Pergamon Press (1959)
- [44] P. TCHENIO, A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET  
Phys. Rev. A. Vol 38, 5235 (1988)
- [45] A. BRISSAUD, U. FRISCH  
J. Math. Phys. Vol 15, 524 (1974)
- [46] J.A. SHIRLEY, R.J. HALL, A.C. ECKBERTH  
Optics Letters, Vol.5, 380 (1980)
- [47] J.E. GOLUB, T.W. MOSSBERG  
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 3, 554 (1986)
- [48] E. ARIMONDO, G. ORRIOLS  
Lettere Al Nuovo Cimento, Vol. 17, 333 (1976)
- [49] H.R. GRAY, R.M. WHITLEY, C.R. STROUD Jr  
Optics Letters, Vol. 3, 218 (1978)
- [50] A. ASPECT, E. ARIMONDO, R. KAISER, N. VANSTEENKISTE, C.  
COHEN-TANNOUDJI  
Phys. Rev. Lett. Vol 61, 826 (1988)
- [51] B.J. DALTON, P.L. KNIGHT  
J. Phys. B: At. Mol. Phys. Vol. 15, 3997 (1982)

- [52] S. SWAIN  
J. Phys. B: At. Mol. Phys. Vol. 15, 3405 (1982)
  
- [53] V. FINKELSTEIN, P. TCHENIO  
To be published.
  
- [54] M.A. BOUCHENE, A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET,  
P. TCHENIO, V. FINKELSTEIN, P.R. BERMAN  
Europhysics Letters, Vol. 18, 409 (1992)
  
- [55] M.A. BOUCHENE, A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET,  
P. TCHENIO, V. FINKELSTEIN, P.R. BERMAN  
Journal de physique II, Avril 1992
  
- [56] C. SALOMON, J. DALIBARD, A. ASPECT, H. METCALF,  
C. COHEN-TANOUDJI  
Phys. Rev. Lett. Vol 59, 1659 (1987)
  
- [57] P.J. MARTIN, B.G. OLDAKER, A.H. MIKLICH, D.E. PRITCHARD  
Phys. Rev. Lett. Vol 60, 515 (1988)
  
- [58] V.I. BALYKIN, V.S. LETOKHOV  
Physics Today, P. 23, April 1989
  
- [59] J.E. THOMAS  
Optics Letters, Vol. 14, 1186 (1989)
  
- [60] J.E. THOMAS  
Phys. Rev. A. Vol 42, 5652 (1990)
  
- [61] K.D. STOKES, C. SCHNURR, J.R. GARDNER, M. MARABLE, G.R. WELCH,  
J.E. THOMAS  
Phys. Rev. Lett. Vol 67, 1997 (1991)
  
- [62] J.E. ROTHENBERG, D. GRISCHKOWSKY, A.C. BALANT  
Phys. Rev. Lett. Vol 53, 552 (1984)
  
- [63] N. MORITA, K. TORIZUKA, T. YAJIMA  
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 3, 543 (1986)
  
- [64] A. REBANE, R. KAARLI, P. SAARI, A. ANILJAG, K. TIMPMANN  
Optics Commun. Vol. 47, No 3, 173 (1983)

- [65] Ultrashort light pulses: picosecond techniques and applications.  
S.L. SHAPIRO  
Ed. Springer-verlag, Berlin (1977)
  
- [66] H. MAHR, M.D. HIRSCH  
Optics Commun. Vol. 13, 96 (1975)
  
- [67] N. NAKASTSUKA, Y. KATASHIMA, K. INOUYE, R. YANO  
Optics Commun. Vol. 69, No 2, 169 (1988)
  
- [68] Fourier transform infrared spectrometry  
P.R. GRAFFITHS, J.A. DE HASETH  
Wiley Interscience publication (1986)
  
- [69] S. SAIKAN, T. KISHIDA, A. IMAOKA, K. UCHIKAWA, A. FURUSAWA, H. OOSAWA  
Optics letters, Vol. 14, 841 (1989).
  
- [70] Stochastic processes in physics and chemistry  
N.G. VAN KAMPEN  
North Holland P.L. (1981)
  
- [71] To be published
  
- [72] A. DEBARRE, J.C. KELLER, J.L. Le GOUET, P. TCHENIO, J.P. GALAUP  
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 8, 2529 (1991)





# Observation of $0\pi$ -pulse formation with incoherent light

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

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

Received April 3, 1991; revised manuscript received September 11, 1991

Observation of  $0\pi$ -pulse formation with incoherent light through field cross-correlation is theoretically and experimentally demonstrated. The experiment illuminates some of the properties of this new incoherent light technique, which is used to analyze the fast temporal variations of the signal. In particular, the technique's time resolution, signal-to-noise ratio, and sensitivity to dispersion are investigated.

## 1. INTRODUCTION

During the past few years several groups have demonstrated that various ultrafast phenomena, which are usually investigated with short light pulses, can be observed with long pulses of incoherent light. In incoherent-light techniques the time resolution of the experiment is given not by the duration of the excitation pulse but by its coherence time, which coincides with its inverse spectral width. The coherence time can be several orders of magnitude smaller than the pulse duration. Thus conventional (nanosecond or cw) laser sources were used to measure subpicosecond dephasing times<sup>1</sup> and a Kerr tensor relaxation time<sup>2</sup> and to monitor picosecond population relaxation by means of the pump-probe technique.<sup>3</sup> In particular, temporal analyses of rapidly varying photoinduced optical emissions were attempted with the incoherent-light approach.<sup>4-7</sup> In this paper we investigate some properties of a recently proposed method.<sup>7</sup> We compare it with other techniques that are used to analyze rapidly varying photoinduced optical emissions and especially with other incoherent-light approaches.

The analysis of rapidly varying optical emissions induced by incoherent light was first considered by Morita *et al.*<sup>4</sup> They studied coherent propagation of small-area pulses that resonantly excite an optically dense atomic vapor. With short coherent pulses strong reshaping effects occur.<sup>8,9</sup> Pulse envelopes develop characteristic oscillatory temporal structures on a time scale that is much shorter than the inverse spectral width of the resonantly excited line. For the usual Doppler broadenings of vapor lines in the visible range this time scale is in the picosecond or subpicosecond range. According to Morita *et al.*<sup>4</sup> the response to a short coherent pulse can be determined when excitation is provided by a long pulse of incoherent light. It is necessary only that the long-pulse coherence time equal the duration of the short coherent pulse. In this first approach Morita used an intensity cross-correlation technique that is similar to sampling techniques used with short pulses,<sup>10</sup> except that the time resolution is determined by the coherence time of the excitation pulse and not by the duration of the pulse. An initial broadband long pulse was split into two parts. One part propagated through the vapor and generated the transmitted pulse. The other part was sent through a

variable delay line to be used as reference. Then the intensity correlation between the transmitted pulse and the reference was measured by mixing them in a nonlinear crystal and detecting the sum-frequency signal. The intensity cross correlation was determined as a function of the delay between the propagated pulse and the reference pulse. Two components appear in the intensity cross-correlation profile as a function of the relative delay. One is a useful component that reproduces the intensity cross-correlation profile that would be obtained if the initial pulse were short, that is, of an effective duration equal to its coherence time  $\tau_c$ . This component gives the temporal development of a short pulse of duration  $\tau_c$  after its propagation exactly as it could be determined in a short-pulse experiment by an intensity cross-correlation technique. But this useful component stands out against a strong background that spoils the signal-to-noise ratio. It has been shown that this background can be suppressed if the field cross correlation between the analyzed emission and the reference were measured instead of the intensity cross correlation.<sup>6,7</sup>

The field cross correlation can be determined with the help of an interferometer (a technique that is used in infrared dispersive Fourier spectroscopy<sup>11</sup>) or by heterodyne detection.<sup>6</sup> But in these methods the delay between the reference pulse and the analyzed emission has to be controlled within less than an optical period (interferometric control). This leads to unnecessary complications of the experimental setup when the investigated signal varies on time scales much larger than the optical period, especially in the visible range, where this period is only a few femtoseconds. Thus noninterferometric techniques have been developed for autocorrelation function measurements in order to characterize spectral properties of the sources. These techniques can be named grating methods, and they can be entirely optical or hybrid. In the first techniques, used to measure the field cross correlation between two pulses, an illumination grating is produced by interference between the pulses. This grating is stored in a dye film<sup>12</sup> or in a colored glass filter<sup>13</sup> ( $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$ -doped glasses). Then the modulation depth of the grating is determined by measuring its diffraction efficiency with a third probe pulse. In the hybrid method<sup>7,14</sup> that we have developed and use in this study the illumination grating produced by the interference of

the two pulses is detected by an array detector and recorded by a microcomputer. Its modulation depth is then computed by a fast-Fourier-transform processor. The two kinds of method are not interferometric because, unlike the absolute fringe position, the measured modulation depth of the illumination fringe pattern does not interferometrically depend on the time delay between the pulses. The hybrid method is slower because of the numerical calculation of the Fourier transform, which is completed optically by the third pulse in the entirely optical method. But the hybrid method permits the analysis of small signals for which it would be difficult to engrave a grating in a material, even in colored glasses for which the engraving process is relatively efficient. In addition, the hybrid method is more versatile: The same device can be used without any change over a spectral domain that ranges from 400 to 1100 nm.

The noninterferometric cross-correlation technique was used to analyze the temporal development of a four-wave mixing signal for which only the absorption of the sample plays an important role.<sup>7</sup> To illuminate some other aspects of this technique, it is interesting to investigate a situation for which the dispersion of the sample determines the temporal development of the analyzed signal.  $0\pi$ -pulse formation, which is a coherent propagation effect in optically thick atomic vapors, corresponds to just this situation. Besides, the theory of the phenomenon is well known, permitting a precise comparison between theory and experiment. Finally, the  $0\pi$  formation effect was previously studied by a short-pulse technique<sup>8</sup> and also by the intensity cross-correlation technique in incoherent light.<sup>4</sup> Thus these different approaches can be compared. The paper is organized as follows. In Section 2  $0\pi$  pulse formation with short coherent pulses is analyzed. This case is a baseline situation, since the field cross-correlation measurement in incoherent light is expected to reproduce a short-pulse analysis with an effective pulse duration that is the coherence time of the light. We focus on the specific experimental conditions to show the key role of dispersion in this situation. In Section 3 the theoretical analysis of  $0\pi$ -pulse formation observation through noninterferometric field cross-correlation in incoherent light is carried out. It is shown that the noninterferometric field cross-correlation signal is not free from a small background, but, in contrast with the intensity cross-correlation technique, the signal-to-background ratio remains high. In Section 4 experimental results are presented and discussed. In Section 5 results are summarized, and potential applications of the method are considered.

## 2. $0\pi$ PULSE FORMATION WITH SHORT COHERENT PULSES

$0\pi$ -pulse formation results from the propagation of small-area coherent pulses through an optically dense atomic vapor. It was shown<sup>8</sup> that strong reshaping effects occur when the excitation pulse duration  $\tau$ , is smaller than the inverse spectral width of the absorption line. The effects result from two apparently contradictory propagation laws. First, the pulse is short. Its spectrum width  $\tau_e^{-1}$  is larger than the absorption line width, so most of the initial energy is transmitted. In particular, the energy does

not decrease exponentially as a function of the distance  $z$  of propagation in the sample. The second propagation law concerns the pulse area  $\theta(z)$  at a depth  $z$  in the sample. This area decreases exponentially with the on-resonance absorption coefficient  $\alpha_0$ , according to the law

$$\frac{d\theta(z)}{dz} = -(\alpha_0/2)\theta(z). \quad (1)$$

Equation (1) is a special case of the McCall-Hahn area theorem<sup>15</sup> for small-area pulses. The two propagation laws can be simultaneously satisfied when the pulse envelope develops an oscillatory temporal structure.

Let us determine this structure. After propagation through the medium of length  $L$ , at point  $r$  of the detection area the transmitted field  $E(r, t)$  can read as

$$E(r, t) = \mathcal{E}(L, t)\exp[i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] + \text{c.c.}, \quad (2)$$

where  $\mathbf{k}$  is the field wave vector and where the envelope  $\mathcal{E}(L, t)$  varies slowly with respect to the optical frequency  $2\pi/\omega$ . The  $r$  dependence of the envelope has been suppressed because its variations are assumed to be negligible in the detection area. Because the pulse area is small, the Maxwell-Bloch equations can be linearized, and we can apply the linear dispersion theory developed by Crisp.<sup>6</sup> The transmitted field envelope can read as

$$\mathcal{E}(L, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau T(\tau)\mathcal{E}(0, t - \tau), \quad (3)$$

where  $\mathcal{E}(0, t)$  denotes the input excitation field envelope and  $T(\tau)$  is the response to a  $\delta$ -function-like excitation.  $T(\tau)$  satisfies the causality property  $T(\tau) = 0$  if  $\tau < 0$ . Equation (3) can be rewritten in the spectral domain as

$$\mathcal{E}(L, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu \exp(2i\pi\nu t)\hat{T}(\nu)\hat{\mathcal{E}}(0, \nu), \quad (4)$$

where  $\hat{f}(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \exp(-2i\pi\nu t)f(t)$ . The spectral field transmission can be expressed as

$$\hat{T}(\nu) = \exp[-\alpha_1(\nu) + i\alpha_2(\nu)], \quad (5)$$

where  $\alpha_1(\nu)$  [ $\alpha_2(\nu)$ ] is real and gives rise to the absorption part (the dispersion part) of the transmission. The absorption term  $\alpha_1(\nu)$  can read as

$$\alpha_1(\nu) = (\alpha_0 L/2)V(\nu), \quad (6)$$

where  $\exp(-\alpha_0 L)$  is the intensity transmission for monochromatic radiation at the center of the line  $V(\nu)$  is the line profile. To be more specific, the transition  $5s^2\ ^1S_0$ - $5s5p\ ^3P_1$  of Sr vapor is to be considered experimentally here. The homogeneous line is very narrow (the lifetime of the upper level<sup>16</sup>  $T_1 = 21\ \mu\text{s}$ , and no collision occurs during the experiment). In the studied range of optical densities it is appropriate to replace the exact profile  $V(\nu)$  by the inhomogeneous Doppler profile. We have

$$V(\nu) = \exp[-\pi(\nu/a)^2], \quad a = [(2\pi k\theta)/(M_{\text{Sr}}\lambda_0^2)]^{1/2}, \quad (7)$$

where the Doppler linewidth  $(2a)$  is a function of the Boltzmann constant  $k$ , the thermodynamic temperature  $\theta$ , the Sr atomic mass  $M_{\text{Sr}}$ , and the wavelength of the excited transition  $\lambda_0$ . The sample dispersion is related to its ab-



sorption by the Kramers-Kronig relations

$$\alpha_2(\nu) = \pi \mathcal{P} \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu' \alpha_1(\nu') / (\nu - \nu') \right] \\ = (\alpha_0 L) / \pi^{1/2} \text{Daws}(\pi^{1/2} \nu / a), \quad (8)$$

where  $\mathcal{P}$  denotes the principal part of the integral and  $\text{Daws}(x)$  is the Dawson function.<sup>17</sup>  $\alpha_2(\nu)$  decreases slowly with the detuning,  $\nu$ . For

$$\nu \gg a, \quad \alpha_2(\nu) = [(\alpha_0 L) / (2\pi)] (\alpha / \nu). \quad (9)$$

Strong reshaping effects can occur if the transmission  $\hat{T}(\nu)$  differs from unity over the entire excitation bandwidth, which is  $\tau_c^{-1}$ . Since  $\tau_c^{-1}$  is much larger than the Doppler width ( $2a$ ), it is expected that such a broadband distortion of  $\hat{T}(\nu)$  requires that the optical density ( $\alpha_0 L$ ) be rather large. Then the spectral domain over which dispersion takes place (i.e.,  $|\alpha_2(\nu)| > 1$ ) widens rapidly as  $\alpha_0 L$  is increased. According to Eqs. (8) and (9), the domain width  $\Delta\nu_{\text{disp}}$  when  $(\alpha_0 L) \gg 1$  reads as

$$\Delta\nu_{\text{disp}} = (2a\alpha_0 L) / (2\pi). \quad (10)$$

In contrast, the width  $\Delta\nu_{\text{abs}}$  of the spectral domain over which absorption takes place ( $\alpha_1(\nu) > 1$ ) remains close to  $(2a)$  as  $(\alpha_0 L)$  increases. Indeed, according to Eqs. (6) and (7), this width can read as

$$\Delta\nu_{\text{abs}} = (2a) [\pi^{-1} L n(\alpha_0 L / 2)]^{1/2}. \quad (11)$$

Thus pulse reshaping is induced mainly by dispersion effects. To calculate an approximate form of the transmitted intensity  $I(t)$ , which is detected in a short-pulse experiment, let us assume that over most of the initial spectrum the absorption is negligible and that the dispersion can be approximated by its asymptotic expression [Eq. (9)]. We have [Eqs. (3)-(5) and inequality (9)]

$$I(t) = |\mathcal{E}(L, t)|^2 = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau T(\tau) \mathcal{E}(0, t - \tau) \right|^2, \quad (12)$$

with

$$T(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu \exp(2i\pi\nu\tau) \exp[i(\alpha_0 L a) / (2\pi\nu)] \\ = \delta(\tau) - H(\tau) [(\alpha_0 L) a / \tau]^{1/2} J_1[2(\alpha_0 L) a \tau]^{1/2},$$

where  $\delta(t)$  is a delta function,  $H(t)$  a Heaviside step function,

$$H(t) = 0 \quad \text{if } t < 0, \\ H(t) = 1 \quad \text{if } t > 0, \quad (13)$$

and where  $J_1(t)$  is an integer Bessel function and contains the oscillatory temporal behavior of the transmitted field. For large optical densities the time scale of these oscillations of the transmitted intensity is much shorter than the inverse Doppler width  $(2a)^{-1}$ , so the scale falls in the picosecond range. This oscillatory structure was observed directly in an experiment with 7-ps excitation pulses.<sup>9</sup> The intensity profile  $I(t)$  was measured by means of intensity cross correlation. For each laser shot one point of the profile was determined by mixing the transmitted pulse with a short pulse of 0.5 ps in a nonlin-

ear crystal and by detecting the sum-frequency signal. The entire profile  $I(t)$  was determined by varying the relative delay between the transmitted pulse and the short pulse. It can be pointed out that the exact shape of the transmitted signal depends on the field and in particular on its phase. Because the phase is difficult to control (some residual chirping can exist), it is hard to predict the value of the signal as long as the characteristic time scales of the variation of the response  $T(\tau)$  and of the field  $\mathcal{E}(t)$  that are involved in the convolution [Eq. (12)] are of the same order of magnitude. This effect was observed in the short-pulse experiment. In Section 3 we discuss how to observe this short-pulse propagation effect with several-nanosecond broadband pulses when a field cross-correlation technique is used.

### 3. FIELD CROSS CORRELATION WITH A LONG BROADBAND PULSE

We are interested in the analysis of the field cross correlation between a propagated small-area broadband long pulse and a time-delayed replica of the initial excitation pulse. The following rough picture can be presented to explain the principle of the field cross-correlation method qualitatively. A broadband field fluctuates with a characteristic time  $\tau_c$ , which is the coherence time of the light and which coincides with its inverse spectral width. The coherence time is much smaller than the pulse duration  $\tau_c$ . The long excitation field can be regarded as a train of elementary coherent components of duration  $\tau_c$ , where each elementary component is decorrelated from the others. The small-area pulse propagation is a linear phenomenon, and the transmitted field is the sum of the elementary transmitted components (elementary responses) that correspond to all the elementary excitation components. In other words, the total transmitted intensity results from the convolution of the elementary response with the long envelope of the excitation pulse. Therefore the temporal behavior of an elementary response does not appear in the measurement of the transmitted intensity. However, if one measures the field cross correlation between the transmitted field and a reference pulse that is a time-delayed replica of the excitation pulse, each elementary component of the reference pulse recognizes only the elementary response that is correlated with it. Then the correlation between the long broadband reference field and the transmitted field reduces to the correlation between a short elementary pulse and the corresponding elementary response. The following theoretical model supports the above picture.

The excitation field  $\mathbf{E}_e(\mathbf{r}, t)$  reads as

$$\mathbf{E}_e(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}(0, t) \exp[i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \text{c.c.}], \quad (14)$$

where the notation of Section 2 [Eqs. (2) and (3)] is used. The field is broadband, and  $\mathcal{E}(0, t)$  is a complex random function that varies slowly with respect to the optical frequency  $2\pi/\omega$ . It is assumed that  $\mathcal{E}(0, t)$  can be expressed as

$$\mathcal{E}(0, t) = \mathcal{E}_0(t) u(t), \quad (15)$$

where  $\mathcal{E}_0(t)$  varies on a time scale that is the pulse duration  $\tau_c$  and  $u(t)$  is a stationary Gaussian random process.

The following relations are satisfied by  $u(t)$ :

$$\begin{aligned}\langle u(t) \rangle &= 0, \\ \langle u(t)u(t + \tau) \rangle &= 0, \\ \langle u(t)u^*(t - \tau) \rangle &= g(\tau),\end{aligned}\quad (16)$$

where the angle brackets stand for the statistical average. The autocorrelation function  $g(\tau)$  is normalized by  $g(0) = 1$ , and its width is  $\tau_c$ . Since the field is assumed to be Gaussian, the higher field moments can be expressed as a function of nonvanishing second-order moments<sup>18</sup> as

$$\begin{aligned}\langle u(t_1) \dots u(t_n)u^*(t'_1) \dots u^*(t'_n) \rangle \\ = \delta_{nm} \sum_P \langle u(t_1)u^*(t_{P(1)}) \rangle \dots \langle u(t_n)u^*(t_{P(n)}) \rangle,\end{aligned}\quad (17)$$

where the summation runs over all the permutations  $P$  of  $\{1, 2, \dots, n\}$ . The pulse is assumed to be long and broadband in the sense that the following inequalities are satisfied:

$$2\pi/\omega \ll \tau_c \ll (2a)^{-1}, \quad \tau_c(2a)^{-1}, \tau_{th} \ll \tau_c, \quad (18)$$

where  $(2a)^{-1}$  is the inverse Doppler width of the transition and  $\tau_{th}$  is the transmitted field duration for a coherent (elementary) short-pulse excitation of temporal width  $\tau_c$ . In other words, the excitation-pulse duration  $\tau_c$  is the longest time parameter involved in the problem, and in particular it is much longer than the required resolution  $\tau_c$ . Besides, the coherence time  $\tau_c$  is much shorter than the inverse Doppler width of the line. In other words, the pulse spectral width that coincides with  $\tau_c^{-1}$  is much larger than the inhomogeneous linewidth; therefore a noticeable fraction of the excitation-pulse energy is transmitted in the same way as in the short-pulse experiment considered in Section 2. Finally,  $\tau_c$  is much larger than the optical period, and an interferometric time resolution is unnecessary.

Because the pulse area is assumed to be small [ $\mu/\hbar \int \mathfrak{E}(t)dt \ll 1$ ], the linear dispersion theory is still valid. Equations (2) and (3) hold, and the transmitted field after propagation through a medium of length  $L$  can read as

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathfrak{E}(L, t)\exp[i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] + \text{c.c.}, \quad (19)$$

with

$$\mathfrak{E}(L, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau T(\tau)\mathfrak{E}(0, t - \tau),$$

where the notation is the same as in Eqs. (2) and (3). Because of the stochastic character of the field, only quantities that are averaged over many realizations of the field have a physical meaning. Here averaging is performed over many laser shots, since the duration of the pulses is finite. With the statistical model of the field, which is defined by Eqs. (15)–(17) and inequality (18), the transmitted intensity can read as

$$\langle I(t) \rangle = \langle |\mathfrak{E}(L, t)|^2 \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau \mathfrak{E}_0^2(t - \tau)\varphi(\tau), \quad (20)$$

with

$$\varphi(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_1 T(\tau)T^*(\tau_1)g(\tau - \tau_1).$$

The time dependence of the intensity appears only in the pulse envelope  $\mathfrak{E}_0^2(t - \tau)$ , which varies on the time scale  $\tau_c$  of the excitation duration. Since  $\tau_c$  is the longest time parameter [inequality (18)], this result confirms that no temporal structure appears on the elementary response time scale  $\tau_c$  when the intensity is observed. To obtain the time resolution given by the coherence time  $\tau_c$  of the light and not by the pulse duration  $\tau_c$ , it is necessary to take advantage of the broadband nature of the excitation. This tactic can be executed by measuring the field cross correlation between the transmitted field (the signal) and a reference pulse, which is a time-delayed replica of the excitation, as a function of the variable delay of the reference. Indeed, the field of such a reference reads as

$$\mathbf{E}_r(\mathbf{r}, t) = \mathfrak{E}(0, t - T)\exp[i(\omega t - \mathbf{k}_r \cdot \mathbf{r})] + \text{c.c.}, \quad (21)$$

where  $T$  is the relative delay at the observation point  $\mathbf{r}$  between the reference and the excitation field. The field cross correlation between the reference and the signal is  $\langle C(T) \rangle$ , where  $C(T)$  reads as

$$C(T) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathfrak{E}(L, t)\mathfrak{E}^*(0, t - T). \quad (22)$$

Let us calculate the square of the cross-correlation function  $\langle C(T) \rangle^2$ . Substituting the transmitted field expressions (19) into the expression for the correlation function, Eq. (22), we have

$$\langle C(T) \rangle^2 = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau T(\tau) \langle \mathfrak{E}^*(0, t' - T)\mathfrak{E}(0, t' - \tau) \rangle \right|^2. \quad (23)$$

Using assumptions (15)–(18) on the field statistical properties, we can rewrite Eq. (23) as

$$\begin{aligned}\langle C(T) \rangle^2 &= \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathfrak{E}_0^2(t) \right|^2 \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau T(\tau) \langle u^*(t - T)u(t - \tau) \rangle \right|^2 \\ &\propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau T(\tau)g(T - \tau) \right|^2.\end{aligned}\quad (24)$$

This expression is similar to that of a transmitted short-pulse intensity [Eqs. (3) and (12)]; here the autocorrelation function  $g(\tau)$  plays the role of the pulse envelope in the short-pulse experiment. Thus the time resolution of the field cross-correlation analysis is the coherence time  $\tau_c$  of the light, which is much shorter than the pulse duration.

Experimentally the field cross correlation is measured by the following procedure (Fig. 1). The excitation and the reference fields are obtained by splitting a single initial broadband pulse. The reference pulse is forwarded into a variable optical delay line. For measurement of the field cross-correlation function (more precisely, its square) a fringe pattern is produced by the interference of the reference and the transmitted pulses [Fig. 1(b)]. The illumination distribution on the detector is  $I(\mathbf{r})$ :

$$I(\mathbf{r}) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dt |\mathbf{E}_r(\mathbf{r}, t) + \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2. \quad (25)$$

The optical delay of the reference is not controlled with

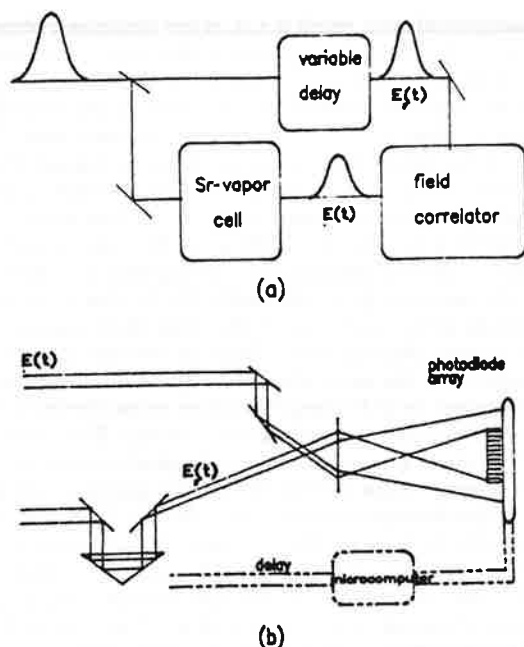


Fig. 1. Experimental arrangement. (a) General diagram. (b) The field cross-correlator with the delay line.

interferometric precision, since the shortest time scale in propagation reshaping is the coherence time  $\tau_c$ , which is much larger than the optical period [inequality (18)]. To show explicitly that the delay control is required only to be better than  $\tau_c$ , let us change Eq. (21), the expression for the reference field, into

$$E_r(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}(0, t - T) \exp[i\phi_0(T)] \exp[i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] + \text{c.c.}, \quad (26)$$

where the phase  $\phi_0$  varies in an unpredicted way when the delay  $T$  is changed. The space-modulated part of the illumination distribution  $I(\mathbf{r})$  [relation (25)] is  $m(\mathbf{r})$ :

$$m(\mathbf{r}) \propto C(T) \exp[i(\mathbf{k}_r - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r} - i\phi_0] + \text{c.c.}, \quad (27)$$

where  $C(T)$  is defined by Eq. (22). Either of two situations can occur, depending on the stability of the experimental setup.

If the stability is interferometric, the phase  $\phi_0$  can be kept constant for a fixed delay  $T$ . Then the space-modulated part of the illumination distribution, averaged over many laser shots, reads as

$$\langle m(\mathbf{r}) \rangle = \langle C(T) \exp(-i\phi_0) \rangle \exp[i(\mathbf{k}_r - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}] + \text{c.c.} \quad (28)$$

Since  $\phi_0$  is constant, the squared amplitude of modulation  $|\langle C(T) \exp(-i\phi_0) \rangle|^2$  coincides with the squared field cross-correlation function  $\langle |C(T)|^2 \rangle$  that we are looking for.

When the stability is not interferometric, the phase  $\phi_0$  and the fringe positions fluctuate from shot to shot. Thus the modulated part of the averaged illumination distribution  $\langle C(T) \exp(-i\phi_0) \rangle$  vanishes. However, the modulation depth of the fringe pattern is not affected by the fluctuations in the fringe positions, which are caused by shot-to-shot modifications of the phase  $\phi_0$ . So instead of averaging the illumination distribution and then

extracting its modulation depth, one first determines the squared modulation depth of the fringe pattern  $|C(T) \exp(-i\phi_0)|^2 = |C(T)|^2$  at each laser shot, and one then averages. Experimentally, for each laser shot, the illumination distribution is recorded, and then a fast-Fourier-transform processor computes the value of the squared modulation  $|C(T)|^2$ . It has been demonstrated that the average value  $\langle |C(T)|^2 \rangle$  can be a good approximation of the exact value of the cross-correlation function  $\langle |C(T)|^2 \rangle$  when the initial pulse is long.<sup>7,19,20</sup> Let us examine the case of field cross-correlation measurements considered in this paper.  $\langle |C(T)|^2 \rangle$  can be expressed as

$$\begin{aligned} \langle |C(T)|^2 \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{+\infty} dt_2 \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_2 [T(\tau_1) T(\tau_2) \\ &\quad \times \langle \mathcal{E}(0, t_1 - \tau_1) \mathcal{E}^*(0, t_1 - T) \mathcal{E}^*(0, t_2 - \tau_2) \\ &\quad \times \mathcal{E}(0, t_2 - T) \rangle]. \end{aligned} \quad (29)$$

A fourth-order moment is involved in the signal expression. According to Eq. (17), the fourth-order moment can be developed as

$$\begin{aligned} &\langle \mathcal{E}(0, t_1 - \tau_1) \mathcal{E}^*(0, t_1 - T) \mathcal{E}^*(0, t_2 - \tau_2) \mathcal{E}(0, t_2 - T) \rangle \\ &= \langle \mathcal{E}(0, t_1 - \tau_1) \mathcal{E}^*(0, t_1 - T) \rangle \langle \mathcal{E}^*(0, t_2 - \tau_2) \mathcal{E}(0, t_2 - T) \rangle \\ &\quad + \langle \mathcal{E}(0, t_1 - \tau_1) \mathcal{E}^*(0, t_2 - \tau_2) \rangle \langle \mathcal{E}^*(0, t_1 - T) \\ &\quad \times \mathcal{E}(0, t_2 - T) \rangle. \end{aligned} \quad (30)$$

Then, with the help of the development of Eq. (30) and of the statistical properties of the field [Eqs. (15)–(17) and inequality (18)], Eq. (29) can be converted into the following expression:

$$\langle |C(T)|^2 \rangle = B_I(T) + B_{II}(T), \quad (31)$$

where

$$\begin{aligned} B_I(T) &= \langle |C(T)|^2 \rangle \\ &= \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{E}_0^2(t) \right|^2 \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau T(\tau) g(T - \tau) \right|^2, \\ B_{II}(T) &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{E}_0^2(t - T) \mathcal{E}_0^2(t) \\ &\quad \times \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} du \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_1 g(-u + \tau_1) T(\tau_1) \right. \\ &\quad \left. \times \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau_2 g^*(-u + \tau_2) T^*(\tau_2) \right] \end{aligned}$$

The term  $B_I(T)$  is the squared correlation function. We have already shown that this term reproduces the intensity  $I(T)$  of a transmitted short pulse with an envelope that coincides with the autocorrelation function. The term  $B_{II}(T)$  is a background.  $B_{II}(T)$  depends on  $T$  only through the envelope  $\mathcal{E}_0^2(t - T)$ ; thus  $B_{II}(T)$  varies only on a time scale  $\tau_c$ . Because the duration  $\tau_{in}$  of the short-pulse response  $B_I(T)$  is shorter than  $\tau_c$  [assumption (18)] on the explored domain of  $T$  values,  $B_{II}(T)$  is constant. In previous experiments in which the propagation of broadband pulses was investigated through intensity cross correlation,<sup>4</sup> the signal could also be analyzed as a rapidly varying component standing out against a broad background. However, in the present case the ratio of the signal peak value to the background is much larger. The

ratio  $B_1^{\max}/B_{\Pi}$  of the signal peak value to the background can be easily evaluated for low optical densities. In this situation the sample is transparent, and the response function  $T(\tau)$  coincides with a  $\delta$  function. Thus we have

$$B_1^{\max} = \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{E}_0^2(t) \right]^2 g^2(0),$$

$$B_{\Pi} = \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{E}_0^4(t) \right] \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau g^2(\tau) \right]^2. \quad (32)$$

Since  $g(\tau)$  is normalized by  $g(0) = 1$  and has a width  $\tau_c$  that is much smaller than the duration  $\tau_e$  of the envelope  $\mathcal{E}_0(t)$ , the signal-to-background ratio ( $B_1^{\max}/B_{\Pi}$ ), which is equal to  $\tau_e/\tau_c$ , is much larger than unity. In contrast, in an intensity cross-correlation experiment this ratio is just unity. In the field cross-correlation technique we remove much of the background that spoils the intensity cross-correlation technique. It can be noted that the improvement of the ratio of the coherent peak  $B_1(T)$  to the background  $B_{\Pi}$  is preserved at any optical density  $\alpha_0 L$ , because the evolution of  $B_1^{\max}/B_{\Pi}$  when  $\alpha_0 L$  is increased is similar in both techniques. To show this evolution, let us express  $B_{\Pi}$  as a function of the excitation spectrum. According to Eq. (31),  $B_{\Pi}$  has the following form:

$$B_{\Pi} = \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{E}_0^4(t) \right] \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} du |G(u)|^2 \right], \quad (33)$$

where

$$G(u) = (T \otimes g)(u),$$

where  $\otimes$  is the convolution symbol. According to the Parseval-Plancherel theorem, the time integration of  $|G(u)|^2$  equals the frequency integration of the corresponding power spectrum  $|\hat{G}(\nu)|^2$ . Thus

$$B_{\Pi} = \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{E}_0^4(t) \right] \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu |\hat{G}(\nu)|^2 \right]$$

$$= \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{E}_0^4(t) \right] \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu |\hat{T}(\nu)|^2 S^2(\nu) \right], \quad (34)$$

where  $S(\nu)$  is the power spectrum of the excitation and is related to the autocorrelation function  $g(\tau)$  by the Wiener-Khinchin theorem:

$$S(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau g(\tau) \exp(2i\pi\nu\tau). \quad (35)$$

Since absorption takes place within a spectral domain that is not much broader than the Doppler profile, which is much narrower than the excitation spectrum  $S(\nu)$  [inequality (18)], the intensity spectral transmission factor  $|\hat{T}(\nu)|^2$  is nearly unity over the largest part of  $S(\nu)$ . The result is that  $B_{\Pi}$  is practically independent of the optical density. As to the term  $B_1(T)$ , its evolution with optical density is exactly the evolution of the transmitted intensity of a short pulse of initial envelope  $g(\tau)$ . When the optical density increases,  $B_1(T)$  takes on an oscillatory structure and lengthens as a function of  $T$  from its initial width  $\tau_c$  to a width  $\tau_{\text{sh}}$ . To ensure the conservation of the short-pulse energy, the peak value of  $B_1(T)$  decreases proportionally to the lengthening  $\tau_{\text{sh}}/\tau_c$ . Thus the signal-

to-background ratio, which is  $\tau_e/\tau_c$  at low densities, reduces to  $\tau_e/\tau_{\text{sh}}$ . But it can be pointed out that strong reshaping effects occur as soon as  $\tau_{\text{sh}}$  is only a few times larger than  $\tau_c$ , while  $\tau_e$  is several orders of magnitude larger than the coherence time  $\tau_c$ . Under experimental conditions the short-pulse response duration  $\tau_{\text{sh}}$  is much shorter than the pulse duration  $\tau_e$  [assumption (18)] and the signal-to-noise ratio always remains much larger than unity.

According to relations (31) and (32), the quantity  $\langle |C(T)|^2 \rangle - \langle C(T) \rangle^2$  is small, which means that  $C(T)$  fluctuates little and nearly coincides with  $\langle C(T) \rangle$ . This result can be related to the quasi-ergodic character of the buildup of  $C(T)$ . Indeed, there is little difference between statistical averaging and the summation of independent elementary contributions to  $C(T)$  along the entire pulse duration. In practice this result has several implications. First, only a few laser shots are necessary to yield a good approximation of the average value. Second,  $\langle C(T) \rangle$  is a good approximation of the short-pulse field amplitude  $\langle C(T) \rangle$ . When the optical density is small, the first peak that corresponds to the direct transmission is much higher than the following oscillations, which reflect interaction with the sample. To visualize these oscillations better, it is interesting to display  $\langle C(T) \rangle$  rather than the field intensity  $\langle |C(T)|^2 \rangle$ .

#### 4. EXPERIMENTAL RESULTS AND DISCUSSION

The analysis through field cross correlation of the propagation of small-area broadband pulses, which is presented theoretically in Section 3, has been experimentally real-

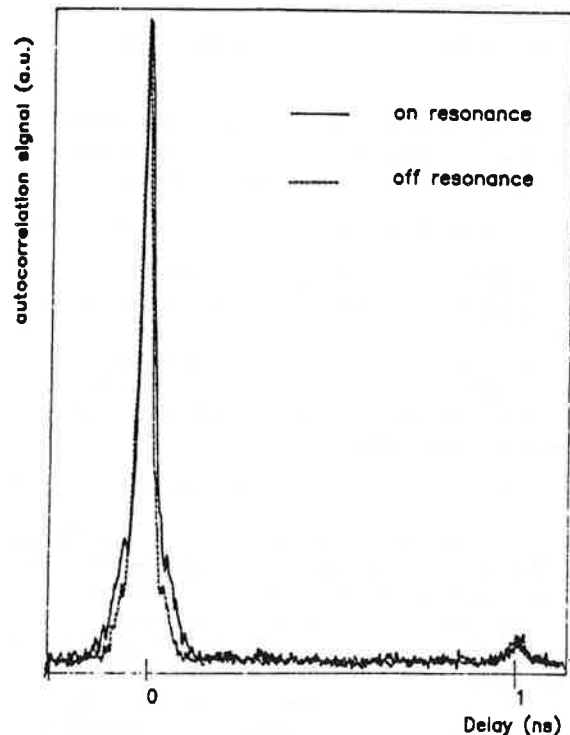


Fig. 2. Autocorrelation measurements. Dashed curve, autocorrelation function of the exciting pulse. Solid curve, autocorrelation function of the propagated pulse with optical density  $\alpha_0 L = 190$ .

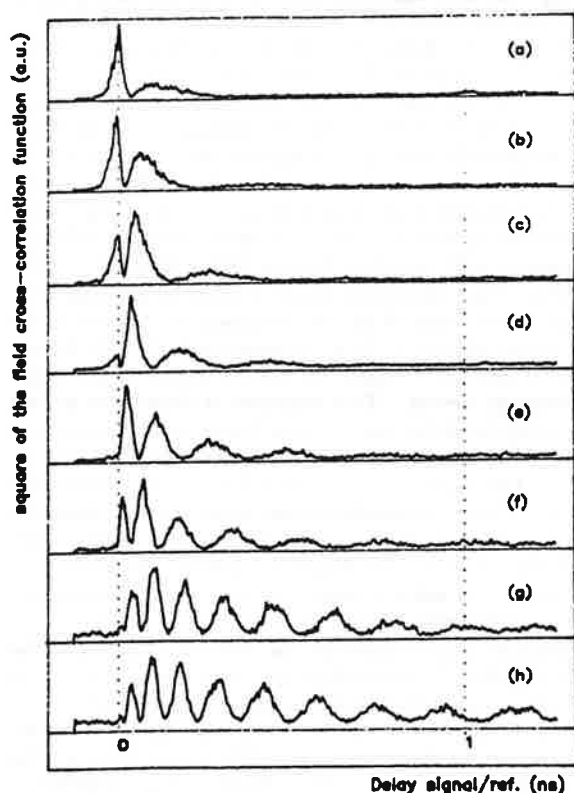


Fig. 3. Measurements of the square of the field cross-correlation function  $\langle |C(T)|^2 \rangle$  between the propagated pulse (signal) and the reference pulse as a function of their relative delay. The optical density ( $\alpha_0 L$ ) is (a) 7, (b) 13, (c) 25, (d) 39, (e) 68, (f) 104, (g) 177, (h) 192.

ized. The experimental procedure is illustrated in Fig. 1. A broadband laser pulse is split into two parts. One propagates through a 20-cm-long Sr-vapor cell. The other is sent through a variable delay line and constitutes the reference. The field cross correlation between the propagated beam and the reference is measured as a function of the delay between the excitation and the reference. To study how this signal evolves with the optical density of the vapor, we repeat the procedure for various cell temperatures.

The broadband pulse issues from a dye laser, which is pumped by the second harmonic of a nanosecond Nd:YAG laser. The repetition rate is  $15 \text{ s}^{-1}$ . The dye-laser pulse duration is  $\tau_e = 8 \text{ ns}$ , and its coherence is  $\tau_c = 30 \text{ ps}$ . This time was determined by measuring the autocorrelation function (Fig. 2). The laser is tuned to the transition  $5s^2 \ ^1S_0 - 5s5p \ ^3P_1$  of Sr vapor. The central frequency of this transition corresponds to the wavelength  $\lambda_0 = 689 \text{ nm}$ . The transition is inhomogeneously broadened by the Doppler effect. The inverse Doppler width, in the range of experimental temperatures, is  $\sim 600 \text{ ps}$ . The lifetime of the upper level is  $T_1 = 21 \mu\text{s}$ .

The experimental cross-correlation profiles for various optical densities are presented in Figs. 3 and 4. In Fig. 3 the measured quantity is the correlation function  $\langle |C(T)|^2 \rangle$ . The field cross correlation is strongly oscillatory for high optical density, as is expected. It can be noted also that the signal-to-background ratio decreases a

little when the optical density increases, as was predicted by the theory (Section 3). But this signal-to-background ratio remains good ( $>8$ ), because the pulse duration  $\tau_e$  (8 ns) is always longer than the short-pulse response duration  $\tau_{sh}$  (less than 1 ns). In Fig. 4 the displayed quantity is  $\langle |C(T)| \rangle$ , which permits one to visualize the fast oscillations of the field cross-correlation signals better. The weak background that is predicted by the theory has been suppressed for comparison with the short-pulse experiment. According to the theory, the experimental profiles correspond to the transmitted field amplitude of a coherent short pulse, whose envelope would be the autocorrelation function of the broadband excitation field. To fit the autocorrelation function of the excitation (Fig. 2), a Gaussian pulse of 30 ps has been chosen. The optical density ( $\alpha_0 L$ ) has been adjusted to obtain the best fit between experimental curves and theoretical ones. In Fig. 4 the theoretical responses to this 30-ps short pulse are shown (curves drawn with crosses). The agreement with experimental profiles (solid curves) is good. It can be pointed out that the time resolution of the experiment is more than 2 orders of magnitude better than that of the pulse duration, since the pulse duration is  $\approx 8 \text{ ns}$  and temporal structures as short as 30 ps have been resolved.

It has been shown in Section 2, which describes the theoretical treatment of  $0\pi$ -pulse propagation, that dispersion plays a dominant role in strong pulse reshaping at high optical density. This relationship is illustrated in Fig. 5, where good agreement is shown between an experi-

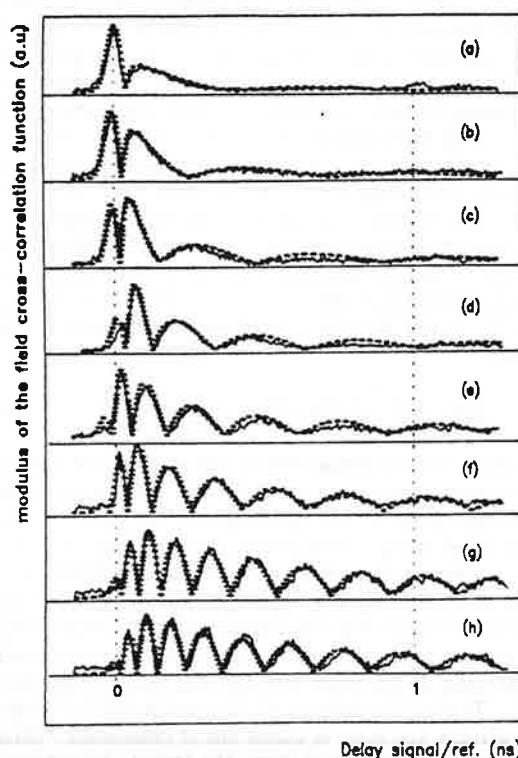


Fig. 4. Experimental (solid curve) and theoretical (small crosses) profiles of the modulus of the field cross-correlation  $\langle |C(T)| \rangle$  between the propagated pulse (signal) and the reference pulse as a function of their relative delay. The optical density ( $\alpha_0 L$ ) is (a) 7, (b) 13, (c) 25, (d) 39, (e) 68, (f) 104, (g) 177, (h) 192.

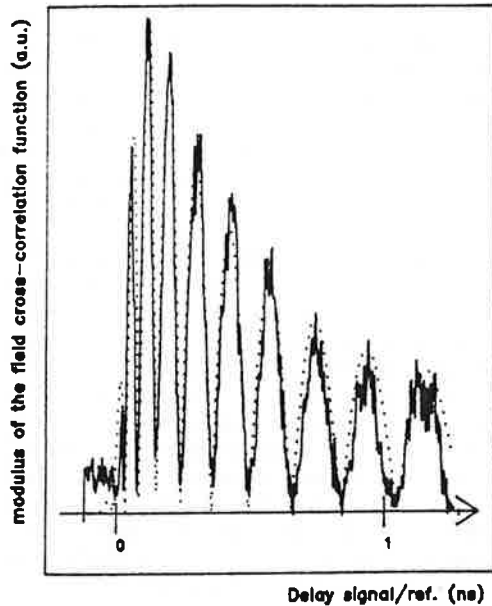


Fig. 5. Solid curve, experimental field cross-correlation profile for an optical density ( $\alpha_0 L = 192$ ). Dotted curve, the corresponding theoretical profile when only dispersion is taken into account.

mental transmitted field amplitude profile for high optical density ( $\alpha_0 L = 192$ ) and a theoretical profile for which we have used the approximate form of the transmission function [Eqs. (13)], which takes only dispersion into account. Thus a field cross-correlation measurement differs from a spectral absorption measurement in which all dispersion effects are washed out. In absorption spectroscopy the only way to retrieve dispersion is to relate it to absorption by Kramers-Kronig relations. Precise measurement of absorption in the wings of the line is then required. This task is hard to accomplish, especially when the line shape is not precisely known. Direct measurement of dispersion is more reliable. A measurement that is equivalent to an absorption measurement is an autocorrelation measurement. Indeed, according to the Wiener-Khinchin theorem, the autocorrelation function of the transmitted field  $g_t(\tau)$  is the Fourier transform of the transmitted spectrum:

$$g_t(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu |\hat{T}(\nu)|^2 S(\nu) \exp(2i\pi\nu\tau). \quad (36)$$

Then, since all dispersion effects are washed out, the absorption contribution can be isolated. The autocorrelation configuration is obtained with a minor change of the experimental setup. In this new arrangement the reference is no longer derived from the excitation field. It is instead derived from the field transmitted through the sample [the same as Fig. 1(a) except with the sample before the beam splitter]. Figure 2 represents the autocorrelation function of the pulse without and with propagation effects. To yield the autocorrelation profile without propagation effects, the laser is tuned out of resonance. Since the excitation spectrum is wide, the global absorption is weak, and the autocorrelation function with propagation effects is slightly modified with respect to the initial autocorrelation function. But below the central peak a rela-

tively wide base appears, which reflects the absorption of spectral components at the center of the spectrum.

The present study has general implications for experiments in which the field cross-correlation technique is used. As has been demonstrated, group-velocity dispersion effects are revealed by this technique. From a different point of view, in any application of this technique the field cross correlation is distorted, and the time resolution is spoiled if the optical elements used in the experimental setup do not produce the same dispersion effect in the signal path and the reference path. However, to keep the best time resolution, which is given by the coherence time of the light, it is not necessary to get rid of the dispersive elements. It is necessary only that the dispersion effects be the same in the two paths of the cross-correlation device. This situation is illustrated in this paper by the difference between the cross-correlation profile of Fig. 5 and the autocorrelation profile of Fig. 2, where the vapor can be regarded as the dispersive element. The cross-correlation measurement corresponds to the situation in which the two paths are unsymmetrical and the group-velocity dispersion affects the profile. In contrast, the autocorrelation measurement shows how strong dispersion effects are eliminated when the same dispersion is undergone by the reference pulse and the signal pulse. Compensation for dispersion effects by a convenient symmetry in the experimental arrangement is a feature common to several incoherent-light techniques. Compensation was demonstrated for a four-wave mixing signal by Gomes *et al.*<sup>15</sup> This situation is quite different from the usual short-pulse analysis through intensity cross correlation. Indeed, in this situation the time resolution is determined by the durations of the excitation pulse and the reference pulse. Any dispersive element in the experimental system lengthens one of these pulses, and so it degrades the time resolution without any possible compensation between the two paths. This feature results from the loss of the signal field phase and the reference field phase in the intensity cross-correlation measurement and not from the nature of the excitation. With a field cross-correlation technique, elimination of dispersion effects can be realized with short coherent pulses in the same way as with long incoherent-light pulses.

## 5. CONCLUSION

Observation of  $0\pi$  formation with an incoherent excitation through field cross correlation has been theoretically and experimentally demonstrated. The time resolution of the experiment is determined by the coherence time of the light and not by the pulse duration. Specifically, an 8-ns incoherent pulse is analyzed by field cross correlation after its propagation through an optically dense Sr vapor. The coherence time of the excitation light is 30 ps. It is shown that the cross-correlation profile reproduces the expected temporal behavior of a 30-ps coherent pulse after its propagation through the vapor. With respect to previous investigations devoted to the temporal analysis of a fast optical response with incoherent light, this technique combines the advantages of being noninterferometric and ensuring a good signal-to-background ratio. This technique was first used to determine the temporal behavior of a four-wave mixing signal.<sup>7</sup> In the previous experi-

ment the spectral variations of the absorption generated the fast temporal variations of the optical response. In  $0\pi$ -pulse formation the reshaping results from the group-velocity dispersion of the sample. This experiment shows the convenience of the technique for the investigation of sample dispersion. In particular, this method is not equivalent to a simple spectral absorption measurement in which all dispersive effects are erased. Besides, although the method is sensitive to dispersion, the spurious dispersive effects that are due to the optical elements of the experimental setup can be eliminated by compensation between the analyzed signal path and the reference path. This capacity is specific to the field cross-correlation technique. When one is measuring the intensity cross-correlation with short coherent pulses, the time resolution is given by the duration of the pulse. Any dispersive elements lengthen the pulse and so degrade the time resolution. This advantage is particularly valuable for very short time resolution (below 1 ps).

In the research reported in this paper the coherence time was relatively long (30 ps). But with a conventional nanosecond dye laser or an imperfectly mode-locked picosecond dye laser<sup>1-3</sup> the coherence time can easily be reduced to obtain a subpicosecond time resolution. With a time resolution of this order of magnitude, the way is opened for applications to optical data storage of persistent spectral hole burning. In persistent-hole-burning materials, which are of interest for optical data storage,<sup>21</sup> spectral holograms can be engraved over wide spectral domains ( $\approx 100 \text{ cm}^{-1}$ ). Reading in the time domain of these holograms requires a subpicosecond time resolution.<sup>21,22</sup> This promising application is discussed in a separate publication.<sup>23</sup>

In this paper we focus on a linear-response analysis, and generalization to another linear optical response is straightforward. For a general nonlinear process, for example, self-induced transparency, the field cross-correlation method does not work, because the nonlinear process combines the phases of the various elementary pulses in a complicated way. But, for the finite-order nonlinear responses, multidimensional field correlation schemes with noisy sources have been demonstrated in nuclear magnetic resonance.<sup>24</sup> It was even proposed that an interferometric scheme be tested in optics.<sup>25</sup> The determination of nonlinear response functions is the next step in these field-correlation techniques with broadband light. Indeed, that determination would open the way to the measurement of atomic parameters hidden by inhomogeneous broadening and in particular to population relaxation times  $T_1$ , which remain difficult to measure with a good signal-to-background ratio with incoherent light.

## REFERENCES

1. T. Hattori and T. Kobayashi, "Femtosecond dephasing in a polydiacetylene film measured by degenerate four-wave mixing with an incoherent nanosecond laser," *Chem. Phys. Lett.* **133**, 230-234 (1987).
2. K. Kurokawa, T. Hattori, and T. Kobayashi, "Subpicosecond molecular dynamics studied by degenerate four-wave mixing with incoherent light," *Phys. Rev.* **36**, 1298-1304 (1987).
3. M. Tomita and M. Matsuoka, "Ultrafast pump-probe measurement using intensity correlation of incoherent light," *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 560-563 (1986).
4. N. Morita, K. Torizuka, and T. Yajima, "Coherent propagation effect of incoherent light," *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 548-553 (1986).
5. H. Nakatsuka, Y. Katashima, and K. Inouye, "Incoherent light gated optical Kerr shutter for fluorescence lifetime measurement," *Opt. Commun.* **69**, 169-172 (1988).
6. S. Saikan, T. Kishida, A. Imaoka, K. Ichikawa, A. Furusawa, and H. Oasawa, "Optical memory based on heterodyne-detected accumulated photon echoes," *Opt. Lett.* **14**, 841-843 (1989).
7. A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, and P. Tchénio, "Field cross-correlation retrieval of optically stored data," *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 153-159 (1991).
8. M. D. Crisp, "Propagation of small area pulses of coherent light through a resonant medium," *Phys. Rev. A* **6**, 1604-1611 (1970).
9. J. E. Rothenberg, D. Grischkowsky, and A. C. Balant, "Observation of the formation of the  $0\pi$  pulse," *Phys. Rev. Lett.* **53**, 552-555 (1984).
10. E. P. Ippen, C. V. Shank, "Techniques for measurement," in *Ultrashort Light Pulses Picosecond Techniques and Applications*, S. L. Shapiro, ed. (Springer-Verlag, Berlin, 1977), pp. 83-122.
11. P. R. Griffiths and J. A. de Haseth, *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (Wiley, New York, 1984), Chap. 11.
12. H. J. Eichler, U. Klein, and D. Langhans, "Coherence time measurement of picosecond pulses by light-induced grating method," *Appl. Phys.* **21**, 215-219 (1980).
13. A. S. L. Gomes, L. H. Acioli, C. de Araújo, and J. R. Rio Leite, "Dispersion of coherence spikes of incoherent broadband dye lasers," *Opt. Commun.* **73**, 475-478 (1989).
14. A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Gouët, A. Richard, and P. Tchénio, "An amplitude correlator for broadband laser source characterization," *Opt. Commun.* **73**, 309-313 (1989).
15. S. L. McCall and E. L. Hahn, "Self-induced transparency," *Phys. Rev.* **183**, 457-485 (1969).
16. M. D. Havey, L. C. Belling, and J. J. Wright, "Measurement of the  $^2P_1$  lifetime in Sr," *Phys. Rev. A* **13**, 1269-1270 (1976).
17. M. Abramowitz and I. A. Stegun, eds., *Handbook of Mathematical Functions* (Dover, New York, 1972), pp. 298.
18. N. G. Van Kampen, *Stochastic Processes in Physics and Chemistry* (North-Holland, Amsterdam, 1981), Chap. 11.
19. R. Trebino, E. K. Gustafson, and A. E. Siegman, "Fourth-order partial-coherence effects in the formation of integrated-intensity gratings with pulsed light sources," *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 1295-1304 (1986).
20. P. Fu, Z. Yu, X. Mi, and P. Ye, "Fourth-order coherence-function of laser induced molecular grating reorientational grating and population grating," *J. Phys. (Paris)* **48**, 2089-2096 (1987).
21. W. E. Moerner, ed., *Persistent Spectral Hole-Burning. Science and Applications* (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
22. A. Rebane, J. Aaviksoo, and J. Kuhl, "Storage and time reversal of femtosecond light signals via persistent spectral hole-burning holography," *Appl. Phys. Lett.* **54**, 93-95 (1989).
23. A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, P. Tchénio, and J.-P. Galaup, "Optical information storage in condensed matter with stochastic excitation," *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 2529-2536 (1991).
24. B. Blümich, "White noise nonlinear system analysis in nuclear magnetic resonance spectroscopy," *Prog. Nucl. Magn. Reson. Spectrosc.* **19**, 331-417 (1987).
25. B. Blümich, "Two dimensional interferometry," *Rev. Sci. Instrum.* **58**, 911-919 (1987).





Nom BOUCHENE

Prénoms: Mohamed Aziz

Titre: DIPOLES OPTIQUES EN CHAMPS STOCHASTIQUES INTENSES

\*\*\*\*\*

RESUME:

Ce mémoire examine des effets induits par des champs lumineux stochastiques. Une première partie est consacrée aux effets de puissance qui se produisent dans un système atomique excité dans une configuration expérimentale de mélange à quatre ondes résolu dans le temps. Le résultat paradoxal de cette étude est la mise en évidence, dans un système à trois niveaux en V, de structures temporelles plus courtes que le temps de corrélation de la lumière, alors que celui-ci constitue le paramètre temporel le plus court du problème. La deuxième partie concerne le développement d'une nouvelle technique d'échantillonnage pour l'analyse de phénomènes ultra-rapides, en utilisant des impulsions faibles stochastiques et de longue durée. Deux cas sont traités, celui de l'effet Kerr induit par un champ chaotique intense et celui de la propagation d'une impulsion stochastique dans un milieu optiquement épais. Les expériences qui mettent en évidence ces différents effets donnent toutes lieu à une interprétation théorique complète.

MOTS CLES:

Echo de photon

Réseaux transitoires

Effets de puissance

Effet Kerr

Mélange à quatre ondes

Résonance noire

Lumière incohérente

Echantillonnage