

UNIVERSITE  
PAUL  
SABATIER



TOULOUSE III

## THÈSE

*présentée pour obtenir*

le grade de DOCTEUR EN SCIENCES

*spécialité*

Physique Atomique et Moléculaire

*par*

JEAN-CHRISTOPHE DELAGNES

---

# CONTRÔLE DE LA PROPAGATION D'IMPULSIONS ULTRACOURTES. EFFETS DE DÉPLACEMENTS LUMINEUX

---

Soutenue le 15 Décembre 2005 devant la commission d'examen :

M. Philippe	BALCOU	Invité
M. Mohamed Aziz	BOUCHENE	Directeur de thèse
M. Jean	DALIBARD	Président
M. Olivier	FAUCHER	Rapporteur
M. Eric	FREYSZ	Examineur
M. Bertrand	GIRARD	Examineur
M. Jean-Louis	LE GOUËT	Rapporteur



## REMERCIEMENTS

Je remercie tout d'abord sincèrement Bertrand Girard et Aziz Bouchene qui m'ont permis d'effectuer ma thèse à Toulouse au sein du Laboratoire Collision Agrégats Réactivité.

Aziz, nous nous connaissions bien avant ma thèse et tu as été plus qu'un directeur de thèse ... Merci pour ces merveilleuses années.

Un gros merci collectif - mais non moins sincère - à l'ensemble des nombreux membres du LCAR.

ありがとうございます

Merci aux membres, passés et présents, de l'équipe FEMTO : S. Zamith et J. Deger, A. Monmayrant (Bomber X), B. Chatel, et V. Blanchet - à qui j'adresse un remerciement tout particulier.

Ceux sans qui, ça marcherait moins bien tout les jours : Marie-France & Agnès, Laurent & William, Gilles, Philippe et Thierry, Daniel & Michel, Nicolas. Gérard Tréneç.

Le "gang" Agrégats et en particulier P. Labastie ("Pappy" Boyington). Tous les membres des équipes dirigées par J. Weiner et J. Vigué. Le groupe théorie. Le nouveau " Vati " : C. Meier (La réponse est  $\pi/2$ ). D. S. Dean (Puisque je te dis que la balle allait toucher le wicket ... Là ça fait 6 points, non ?!). Faheel, Fabien et Marion. Que la force soit avec vous !

Les membres du réseau COCOMO, en particulier K. Bergmann et T. Halfmann de l'université de Kaiserslautern, ainsi que M. Vrakking du AMOLF. K. Ohmori (mon nouveau Sensei) et l'IMS. Le laboratoire Aimé Cotton qui nous a fourni le heat pipe que nous avons utilisé durant toutes les expériences menées pendant ma thèse.

Martine. Thibault (FTW) et Patrick. Oltreb (The Little Prince), Lud & Laure, Herr Doktor Jan, Argatron, John (Heu ... Ben! John quoi!). Jacky & Annick (Pole Position), Nathalie (Hello! My name is Victor, Blada.)

Hünsch, merci de ta présence quotidienne : tu m'as apporté ton soutien et tant d'autres choses.

Si j'ai été frappé d'amnésie et que j'ai omis de remercier quelqu'un, ce n'est pas volontaire et je m'en excuse. Je souhaite sincèrement plein de bonnes choses futures aux membres (permanents ou non) du LCAR et de l'IRSAMC.





*A mes parents et à ma famille.*



# Table des matières

<b>INTRODUCTION</b>	<b>1</b>
<b>I Dispositif expérimental</b>	<b>7</b>
I.1 Oscillateur Titane-Saphir Femtoseconde . . . . .	7
I.1.1 Propagation dans un milieu dispersif transparent . . . . .	7
I.1.2 Effet Kerr . . . . .	10
I.1.3 Fonctionnement de l'oscillateur . . . . .	11
I.2 Caractérisation des impulsions courtes . . . . .	14
I.2.1 Corrélacion interférométrique du premier ordre . . . . .	14
I.2.2 Corrélacion intensimétrique du deuxième ordre . . . . .	16
I.2.3 XFROG . . . . .	17
I.2.4 Autres méthodes de caractérisation . . . . .	18
I.3 Amplificateur régénératif . . . . .	18
I.3.1 Principe de fonctionnement d'un CPA (Chirped Pulse Amplifier) . .	18
I.4 Dispositif de mise en forme . . . . .	22
I.4.1 Principe de fonctionnement du façonneur d'impulsions : ligne 4f et SLM (Spatial Light Modulator) . . . . .	23
I.4.1.1 Etalement spatial du spectre . . . . .	23
I.4.1.2 Calcul du spectre dans le plan de Fourier . . . . .	23
I.4.1.3 Mise en forme en phase et amplitude . . . . .	24
I.4.2 Influence des pixels et des gaps . . . . .	26
I.4.3 Géométrie de la ligne 4-f . . . . .	27
I.5 Production de vapeur atomique - constitution du four . . . . .	29
I.5.1 Vapeur atomique . . . . .	29
I.5.1.1 Pression de vapeur saturante . . . . .	29
I.5.1.2 Fraction de dimère . . . . .	29
I.5.2 Constitution du four . . . . .	31
<b>II Propagation dans un système à deux niveaux</b>	<b>33</b>
II.1 Equations de propagation . . . . .	34
II.1.1 Equation sur le champ électrique . . . . .	34
II.1.2 Equation sur le système quantique - Expression de la polarisation .	37
II.1.2.1 Expression générale . . . . .	37
II.1.2.2 Largeur Doppler négligeable . . . . .	38
II.1.2.3 Prise en compte de la largeur Doppler . . . . .	39

II.2	Etude expérimentale et théorique de cas simples . . . . .	40
II.2.1	Cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier résonante . . . . .	41
II.2.1.1	Situation de champ fort - Théorème de l'aire . . . . .	41
II.2.1.2	Situation de champ faible . . . . .	46
II.2.1.2.1	Fonction réponse . . . . .	46
II.2.1.2.2	Interprétation spectrale . . . . .	50
II.2.2	Cas d'une impulsion à dérive de fréquence (situation de champ faible)	52
II.2.2.1	Remarque préliminaire . . . . .	52
II.2.2.2	Champ rayonné par le système . . . . .	53
II.2.2.3	Champ transmis . . . . .	58
II.2.2.4	Impulsion à dérive de fréquence en champ faible : Expérience	61
II.2.2.4.1	Etude avec l'épaisseur optique $\alpha_0 L$ . . . . .	62
II.2.2.4.2	Etude avec la longueur d'onde $\lambda_L$ . . . . .	64
II.2.2.4.3	Variation avec $\phi_0''$ . . . . .	69
II.2.2.5	Propagation d'impulsion à dérive de fréquence dans une vapeur de sodium . . . . .	71
II.3	Conclusion . . . . .	73
<b>III</b>	<b>Compensation de la dispersion résonante</b>	<b>75</b>
III.1	Principe de la compensation . . . . .	77
III.2	Expérience . . . . .	78
III.3	Résultats expérimentaux . . . . .	80
III.3.1	Résultats sur le profil temporel d'intensité . . . . .	80
III.3.2	Ajustements théoriques . . . . .	84
III.3.3	Mesures par XFROG -Détermination de la phase spectrale . . . . .	86
III.4	Limitations et alternative . . . . .	90
III.4.1	Résultats sur le profil spectral à plus haute résolution . . . . .	90
III.4.2	Limitation principale : Pixellisation et Diffraction . . . . .	92
III.4.3	Autres limitations . . . . .	95
III.4.4	Alternative : Compensation par une phase plate à résonance . . . . .	95
III.4.4.1	Principe . . . . .	95
III.4.4.2	Résultats et comparaison des deux méthodes . . . . .	97
III.5	Effets de la résolution . . . . .	98
III.6	Conclusion et Perspectives . . . . .	99
<b>IV</b>	<b>Propagation dans un système atomique piloté par un champ fort. Cas de systèmes à deux et trois niveaux</b>	<b>103</b>
IV.1	Système à 3 niveaux en $\Xi$ . . . . .	104
IV.1.1	Description du système dans la base stationnaire . . . . .	105
IV.1.2	Base adiabatique . . . . .	107
IV.1.3	Sonde faible et résonante . . . . .	107
IV.1.4	Comportement initial des populations à l'entrée $Z = 0$ . . . . .	108
IV.1.5	Effets sur la propagation . . . . .	112
IV.1.6	Etude spectrale . . . . .	117



IV.1.7 Déplacement lumineux transitoires dans un système à 3 niveaux en $\Xi$ : Conclusion . . . . .	118
IV.2 Système à 2 niveaux sous excitation "bichromatique" . . . . .	119
IV.2.1 Système étudié . . . . .	119
IV.2.2 Article . . . . .	120
IV.2.3 Excitation "bichromatique" : Montage expérimental et résultats . . . . .	142
IV.2.3.1 Montage expérimental . . . . .	142
IV.2.3.2 Résultats (Spectres) . . . . .	144
IV.2.3.2.1 Fréquence image . . . . .	144
IV.2.3.2.2 Dissymétrie . . . . .	145
IV.2.3.2.3 Dépendance avec la puissance du champ fort . . . . .	149
IV.3 Conclusion . . . . .	150
<b>V Propagation dans un système atomique piloté par un champ fort. Cas d'un système à deux niveaux dégénérés.</b>	<b>153</b>
V.1 Modèle théorique . . . . .	153
V.1.1 Schéma d'excitation . . . . .	153
V.1.2 Description dans la base stationnaire . . . . .	155
V.1.3 Description dans la base adiabatique . . . . .	158
V.2 Dispositif expérimental . . . . .	162
V.2.1 Détermination de la variation de phase relative entre le champ fort et le champ faible . . . . .	164
V.3 Résultats théoriques et expérimentaux . . . . .	166
V.3.1 Energie de l'impulsion transmise : variation avec la phase $\phi$ . . . . .	166
V.3.2 Energie de l'impulsion transmise : évolution avec l'intensité du champ fort . . . . .	167
V.3.2.1 Effet du spin orbite . . . . .	169
V.3.2.2 Rôle du recouvrement temporel des impulsions . . . . .	171
V.4 Profil temporel de l'impulsion . . . . .	176
V.5 Conclusion . . . . .	177
<b>CONCLUSION</b>	<b>179</b>
<b>Annexe</b>	<b>183</b>
<b>A Taux d'ionisation dans le Rubidium</b>	<b>183</b>
A.1 Motivations . . . . .	183
A.2 Calcul des moments dipolaires . . . . .	184
A.3 Equations d'évolution . . . . .	186
A.4 Resultats . . . . .	187
<b>B Théorème de McCall&amp;Hahn</b>	<b>189</b>
B.1 Théorème de McCall&Hahn . . . . .	189

<b>C Formulaire</b>	<b>193</b>
C.1 Fonction erreur - Intégrale de Dawson - Sinus, Cosinus et fonctions auxiliaires de Fresnel . . . . .	193
<b>Bibliographie</b>	<b>195</b>

# INTRODUCTION

Depuis son apparition en 1960, le laser est devenu un outil privilégié pour l'étude et la manipulation d'une grande variété de systèmes physiques ou chimiques. Dans l'interaction lumière-matière, ce sont le plus souvent les propriétés de cohérence de la lumière émise par les lasers et des systèmes quantiques excités par ces lasers, qui donnent naissance aux phénomènes les plus spectaculaires. Les recherches se sont concentrées sur l'utilisation des propriétés de cohérence d'une part pour contrôler les systèmes quantiques (e.g. contrôle cohérent), et d'autre part pour contrôler les caractéristiques de la lumière en interaction avec ces systèmes (transparence électromagnétiquement induite). Ce manuscrit se place au croisement de ces deux thématiques de recherche : nous examinons les différentes possibilités de contrôle des effets de propagation des impulsions ultracourtes - effets dont l'étude est aussi un moyen d'investigation efficace pour explorer la dynamique des systèmes atomiques ou moléculaires, mais également pour modifier le profil temporel et général les caractéristiques des impulsions. Afin de positionner le problème, il nous faut dresser un bilan des possibilités qui peuvent être utilisés pour réaliser ce contrôle.

Du point de vue des systèmes physiques, l'interaction cohérente entre une ou plusieurs impulsions laser permet de contrôler, aussi bien l'évolution dynamique que l'état final du système excité. Suivant la complexité du système et la connaissance que l'on a de celui-ci, il existe alors deux approches différentes : le contrôle cohérent et le contrôle optimal. Le contrôle cohérent repose sur le contrôle de l'interférence entre des chemins quantiques qui modifie un processus donné. Le contrôle optimal utilise un algorithme qui détermine la forme d'impulsion qui optimise un processus donné, et ne fait pas nécessairement intervenir des interférences de chemins quantiques comme par exemple une génération de seconde harmonique. Les schémas de contrôle cohérent ne traitent en général que le cas où les effets collectifs peuvent être négligés (champ rayonné négligeable devant le champ incident). Lorsqu'un grand nombre d'atomes interagissent avec le faisceau laser, les effets de propagation doivent être pris en compte et se manifestent sur la forme temporelle des impulsions. En effet, quand le nombre d'atomes excités est suffisamment grand, ils émettent un champ rayonné dont l'amplitude est alors assez importante pour modifier considérablement la forme temporelle du champ transmis. L'influence des effets de propagation a été particulièrement bien mise en évidence par Lambropoulos *et al.* [1-3] sur le contrôle cohérent utilisant un schéma d'excitation de type trois photons - un photon ( $3\omega - \omega$ ) [4]. Ces études ont montré que la dispersion résonante limite de manière considérable l'utilisation du schéma  $3\omega - \omega$ , pour le contrôle de l'absorption dans un milieu optiquement épais. Ceci nous amène au constat suivant : les schémas de contrôle cohérent sont en général contrariés par les effets de propagation, car la phase spectrale accumulée perturbe le schéma initial qui fait souvent intervenir une forme temporelle (amplitude et phase) bien déterminée.

D'un autre côté, il existe un très grand nombre d'études sur la propagation cohérente des impulsions. Nous pouvons distinguer deux modes de propagation. La propagation guidée utilise des fibres optiques (guide d'onde). C'est un domaine actif tant sur le plan technologique (fibres structurées, fibres dopées), que sur un plan plus fondamental où les propriétés de confinement de la lumière induisent des interactions fortement non linéaires

avec le matériau constitutif de la fibre (continuum). Le mode de propagation qui nous intéresse plus particulièrement, est celui de la propagation "libre" dans un milieu matériel. La lumière émise par les lasers est caractérisée par un champ électrique dépendant de l'espace et du temps. L'évolution spatio-temporelle de cette onde électromagnétique, est décrite par les équations de propagation qui découlent des équations de Maxwell. Par rapport à la propagation dans le vide, la propagation dans un milieu matériel fait intervenir la polarisation atomique. Cette polarisation résulte de la réponse des atomes au champ excitateur, et elle est décrite par la mécanique quantique. Parmi les différentes interactions que l'on peut rencontrer, on compte les excitations non résonantes qui peuvent conduire par exemple à la propagation autoguidée de la lumière et au phénomène de filamentation, ou bien les excitations résonantes vers le continuum impliquant parfois des transitions multiphotonique, ou enfin les excitations résonantes dans les états liés de l'atome (ou de la molécule). Dans presque toutes les expériences qui mettent en jeu des dipôles et des rayonnement électriques, il faut prendre en compte les propriétés de transport du rayonnement à travers le milieu. La propagation des impulsions optiques à travers les milieux atomiques résonant a été étudiée activement depuis les années 70. La propagation d'impulsions laser intenses dans un système à deux niveaux donne lieu à une grande variété de phénomènes [5] en régime continu ou quasi-stationnaire (impulsions longues). Bien que cette évolution puisse revêtir des aspects riches et variés dont l'analyse est parfois délicate, l'interaction de la lumière avec un système à deux niveaux fournit une description pratique des interactions lumière-matière et illustre de nombreux aspects de ces interactions sans faire intervenir une grande complexité. Pour des impulsions longues, les résultats sont bien connus. En régime d'impulsions faibles, les études sur des impulsions limitées par transformée de Fourier [6] sont le point de départ des phénomènes de propagation. L'effet principal est alors la distorsion de l'enveloppe du champ électrique dont l'aire algébrique tend vers zéro. En régime d'impulsions intenses, les effets les plus remarquables sont la transparence autoinduite [7–9], l'amplification par rétrécissement (*peak amplification*) [10, 11], ou le fractionnement (scission ou *pulse breakup*) [12]. Ces phénomènes conduisent soit à des changements drastiques de la forme temporelle des impulsions soit au contraire à des situations particulièrement stables [13]. Le théorème quantique de l'aire dérivé par McCall&Hahn est un élément clé pour expliquer ces phénomènes. Pour des impulsions longues proches des résonances, il se produit également le *suivi adiabatique* [14, 15] dont les effets se manifestent aussi bien sur la vitesse de propagation des impulsions que sur le profil spatial du faisceau.

L'interaction entre un système à trois niveaux et un couple d'impulsions lasers, conduit également à une grande variété de phénomènes physiques [16, 17]. Un des exemples les plus remarquables est celui de la transparence électromagnétiquement induite (EIT) [18–20]. En configuration d'EIT, la propagation de l'impulsion faible est radicalement modifiée : cet effet se manifeste par un ralentissement très important de la vitesse de propagation de l'impulsion faible et s'accompagne de la formation d'une fenêtre de transparence dans le domaine spectral.

Ces phénomènes ont été observés très tôt avec des impulsions longues (nécessairement pour l'EIT). Les impulsions ultracourtes ont une durée caractéristique plus petite que l'inverse de la largeur spectrale de la raie d'absorption. L'absorption totale est alors négligeable. Les durées caractéristiques d'excitation, d'évolution et d'observation impliquant

des impulsions ultracourtes sont telles que dans les systèmes atomiques, on peut négliger tous les processus de relaxation qui eux se produisent à des échelles de temps beaucoup plus grandes. C'est une des caractéristiques essentielles des phénomènes de propagation cohérente des impulsions ultracourtes. Nous considérons alors le phénomène d'émission cohérente vers l'avant. L'impulsion transmise résulte de la superposition du champ incident et du champ rayonné par les atomes. Les atomes sont excités de manière cohérente et émettent individuellement un rayonnement cohérent ; après excitation et pendant l'évolution libre, les rayonnements cohérents des atomes s'ajoutent. Puisqu'ils ont des phases d'évolution différentes, la polarisation et donc le champ rayonné se modifie du fait de l'interférence mutuelle entre ces différentes sources : il en résulte une distorsion du champ total. Concernant les impulsions qui ne sont pas limitées par transformée de Fourier, il a été démontré une forte dépendance des effets de dispersion avec la forme temporelle des impulsions incidentes. Dans le cas d'un train d'impulsions ultracourtes, l'influence des effets de propagation peut être contrôlée en ajustant la phase relative entre les impulsions qui détermine l'interférence (optique) mutuelle. Il a été montré qu'en fonction de cette phase relative, un train d'impulsions périodiquement espacées peut être ou non sensible à la dispersion résonante [21, 22]. Nous pouvons citer également le cas particulier des impulsions à dérive de fréquence, étudiée dans les années 80 par Grischkowsky *et al.* [23, 24] dans le cas résonant, qui fait ressortir la phase quadratique sous la forme d'une modulation du profil d'intensité. C'est le battement entre le champ rayonné par les atomes et le champ incident qui est responsable de ces structures temporelles.

On peut modifier directement le champ rayonné. C'est ce type de stratégie qui est mise en oeuvre avec un train d'impulsions où l'on évite la résonance tout en véhiculant beaucoup d'énergie. C'est également le cas lorsque l'impulsion est préalablement façonnée de sorte à annuler la phase spectrale due à la dispersion résonante et accumulée durant la propagation. Dans ce cas c'est uniquement la forme d'impulsion qui détermine les propriétés et l'évolution de l'impulsion pendant la propagation. Puisque les phénomènes de propagation sont le résultat de l'évolution conjointe du champ électrique et des propriétés du milieu à travers les quantités atomiques (équation de Maxwell-Bloch ou Maxwell-Schrödinger en l'absence de relaxation), on peut aussi agir sur la propagation - via le champ rayonné - en contrôlant dynamiquement par un champ de contrôle, la population dans l'état excité. En effet, un peu à l'image de la transparence électromagnétiquement induite, le contrôle des effets de propagation pour des impulsions ultracourtes est possible, si on utilise une impulsion intense qui pilote le système. Le champ faible "sonde" alors la dynamique transitoire induite par le champ fort. Cette dynamique est dominée par les phénomènes transitoires quand le champ fort a une durée plus courte que l'impulsion faible. Cette dynamique contrôlée, modifie la réponse collective des dipôles induits dans le milieu. A son tour, la polarisation induite par les champs excitateurs rayonne un champ. Ce champ rayonné vient modifier de manière contrôlée les caractéristiques temporelles et spectrales du champ qui sonde le système piloté par le champ de contrôle.

Dans tous les cas, les paramètres du ou des lasers doivent alors être choisis de sorte à orienter de manière contrôlée l'évolution temporelle de la cohérence atomique. Notre objectif est alors d'observer et de comprendre comment les processus de contrôle agissent sur les effets de propagation, et quelles sont les conséquences sur le spectre, la forme

temporelle et l'énergie de l'impulsion faible ainsi que les mécanismes d'échange de l'énergie entre l'impulsion de contrôle et l'impulsion faible.

Les résultats théoriques présentés dans ce travail de thèse s'appuient sur des simulations dont la modélisation assez complexe, repose essentiellement sur l'expression et la résolution des équations atome-champs. Bien que représentant un travail conséquent nous n'aborderons pas les détails des méthodes de simulation qui utilisent des routines connues. En revanche, nous présenterons une description et une interprétation des résultats expérimentaux et théorique la plus précise et la plus complète possible.

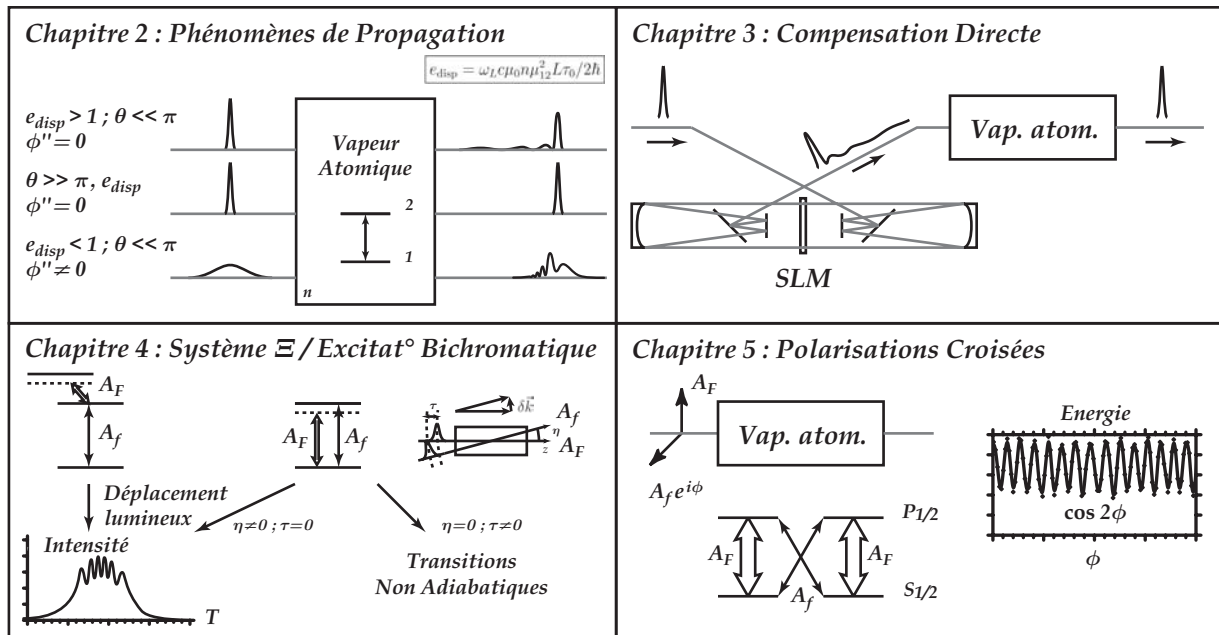
## PLAN DE LA THESE

Ce manuscrit est organisé de la manière suivante : le premier chapitre est consacré à la description du dispositif expérimental utilisé pour produire les impulsions laser (source primaire, amplifiée et mise en forme), à l'introduction de notions élémentaires relatives aux impulsions ultra brèves telles que la propagation dans un milieu dispersif et l'étirement temporel qui en résulte, aux méthodes de caractérisation utilisées pour mesurer le profil temporel et spectral des impulsions avant et après interaction avec un milieu ou après façonnage par le système de mise en forme. Une présentation rapide de la méthode de production et des caractéristiques physico-chimiques de la vapeur atomique qui sert de milieu d'étude conclue cette partie.

Dans le deuxième chapitre, nous établirons les équations de Maxwell-Schrödinger qui régissent la propagation des impulsions lumineuses dans une vapeur atomique sans relaxation. Nous présenterons quelques exemples théoriques et expérimentaux mettant en jeu la propagation d'impulsions laser dans un système à deux niveaux. Nous examinerons particulièrement la propagation d'impulsions à dérive de fréquence. Nous verrons tout d'abord à cette occasion le rôle prépondérant joué par le champ rayonné dans l'évolution de la forme temporelle des impulsions. Nous montrerons aussi que cette situation fait apparaître deux types d'interférences. Premièrement, une impulsion à dérive de fréquence fait apparaître des modulations temporelles sur la population transférée dans l'état excité : les amplitudes transférées hors résonance interfèrent avec l'amplitude transférée à résonance par l'impulsion dont la fréquence qui varie linéairement dans le temps balaye le spectre de l'impulsion. A l'occasion du chapitre trois, nous étudierons une méthode équivalente à la compensation de la dispersion d'un milieu transparent avec une paire de prismes. Cette méthode simple et efficace de compensation de la dispersion résonante, utilise un dispositif de mise forme (*façonneur d'impulsions*) haute résolution.

La suite du manuscrit se compose de deux chapitres où nous discutons des configurations d'interaction atome-champ(s) de complexité croissante. Le chapitre quatre porte sur des études théoriques qui mettent en parallèle le comportement d'un système à trois niveaux (en échelle) avec le comportement un système à deux niveaux sous excitation "bichromatique". Le dernier chapitre présente des résultats originaux obtenus dans un système à deux niveaux dégénérés excité par deux impulsions - l'une faible, l'autre intense - en polarisations croisées. Dans cette configuration, nous verrons que des interférences entre un chemin d'émission et d'absorption du champ faible font apparaître sur l'énergie de l'impulsion faible transmise des oscillations au double de la phase relative  $\phi$  entre les deux impulsions. Les interférences mise en jeu nous permettent de réaliser un contrôle cohérent

aussi bien sur l'énergie que sur la forme temporelle de l'impulsion. Nous présenterons une étude systématique en fonction des paramètres d'excitation (énergie du champ fort, recouvrement des impulsions). Les différentes situations étudiées au cours de cette thèse sont résumées sur la figure ci-dessous.







## Chapitre I

# DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

Ce chapitre est consacré à décrire les différents éléments qui composent les montages expérimentaux mis en place pour étudier les phénomènes de propagation. Dans un premier temps, nous décrirons les sources qui interviennent dans la chaîne laser, mais aussi le dispositif de mise en forme d'impulsions qui complète et étend les possibilités d'expériences. Nous présenterons également la méthode de production et les caractéristiques physico-chimiques de la vapeur atomique qui constitue le milieu étudié.

## I.1 Oscillateur Titane-Saphir Femtoseconde

Avant de présenter le fonctionnement et les caractéristiques de l'oscillateur, nous allons dans un premier temps nous intéresser à deux phénomènes physiques à la base du fonctionnement de l'oscillateur et que l'on rencontre dès que l'on manipule des impulsions courtes.

### I.1.1 Propagation dans un milieu dispersif transparent

Afin d'introduire la notion d'impulsions à dérive de fréquences, nous allons d'abord décrire l'effet d'un milieu dispersif non résonant sur une impulsion courte. Considérons comme modèle, une impulsion lumineuse gaussienne dont le champ électrique est représenté par :

$$\mathcal{E}(t) = \underline{A}_0 \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_0^2}\right) e^{-i\omega_L t} \quad (\text{I.1})$$

et dont la transformée de Fourier est définie selon :

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \mathcal{F}[\mathcal{E}(t)] = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}(t) e^{i\omega t} dt \quad (\text{I.2})$$

ce qui donne d'après I.1 :

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \underline{A}_0 \tau_0 \sqrt{\pi} \exp\left[-\frac{\tau_0^2}{4}(\omega - \omega_L)^2\right] \quad (\text{I.3})$$

Au cours de la traversée du milieu, chaque composante spectrale est affectée par un déphasage supplémentaire. Le spectre  $\tilde{\mathcal{E}}_s(\omega)$  de l'impulsion en sortie du milieu est donné par

le produit du spectre initial et de la transmittance  $\tilde{T}(\omega) = e^{i\phi(\omega)}$  de l'échantillon (supposé purement dispersif) :

$$\tilde{\mathcal{E}}_s(\omega) = \tilde{\mathcal{E}}(\omega)\tilde{T}(\omega) = \underline{A}_0\tau_0\sqrt{\pi}e^{-\frac{\tau_0^2}{4}(\omega-\omega_L)^2}e^{i\phi(\omega)} \quad (\text{I.4})$$

La phase peut être exprimée autour de la pulsation centrale du laser  $\omega_L$  par son développement de Taylor :

$$\phi(\omega) = \phi_0 + (\omega - \omega_L)\phi'_0 + (\omega - \omega_L)^2\frac{\phi''_0}{2} + \dots \quad (\text{I.5})$$

où  $\phi_0$  est la phase évaluée à la pulsation centrale du laser,  $\phi'_0$  est le délai de groupe (GD) et  $\phi''_0$  la dispersion de délai de groupe (GDD). Suivant la durée des impulsions et donc en fonction de la largeur du support spectral associé, nous pouvons restreindre l'expression de la phase aux premiers termes du développement lorsque la dispersion ne varie pas trop rapidement. En se limitant au deuxième ordre, nous obtenons :

$$\mathcal{E}_s(t) = \underline{A}_0\sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_C}}e^{i\varphi_0}e^{-\frac{(t-\phi'_0)^2}{\tau_C^2}}e^{-i[\omega_L+\alpha_C(t-\phi'_0)](t-\phi'_0)} = \underline{A}_C e^{-i\Psi} \quad (\text{I.6})$$

La propagation introduit le retard  $\phi'_0$  et une phase constante  $\varphi_0 = \frac{1}{2}\arctan\left(\frac{2\phi''_0}{\tau_0^2}\right) + \phi_0 - \omega_L\phi'_0$ . L'amplitude complexe  $\underline{A}_C$  contient l'enveloppe du champ électrique et le terme de phase constante :

$$\underline{A}_C = \underline{A}_0\sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_C}}e^{i\varphi_0}e^{-\frac{\tau_{ret}^2}{\tau_C^2}}$$

et la phase  $\Psi$  est définie comme :

$$\Psi = (\omega_L + \alpha_C\tau_{ret})\tau_{ret}$$

où  $\tau_{ret} = t - \phi'_0$  est le temps retardé du délai de groupe. Nous faisons alors apparaître deux quantités physiques importantes

$$\tau_C = \tau_0\sqrt{1 + 4\frac{\phi''_0{}^2}{\tau_0^4}} \quad (\text{I.7})$$

qui est la durée de l'impulsion après propagation et le paramètre

$$\alpha_C = \frac{2\phi''_0}{\tau_0^4 + 4\phi''_0{}^2} = \frac{1}{\tau_C^2}\frac{2\phi''_0}{\tau_0^2} \quad (\text{I.8})$$

qui traduit une dérive de la fréquence instantanée  $\omega_i(t) = \frac{\partial\Psi}{\partial\tau_{ret}} = \omega_L + 2\alpha_C\tau_{ret}$  au cours de la durée de l'impulsion. Le premier terme du développement de la phase qui conduit à une modification de la forme de l'impulsion est le terme quadratique. C'est ce terme, appelé *chirp*, qui est responsable de l'élargissement temporel des impulsions et de la dérive de la fréquence instantanée de la porteuse. Les figures I.1 et I.2 montrent comment est affectée la durée des impulsions par l'addition d'un chirp.

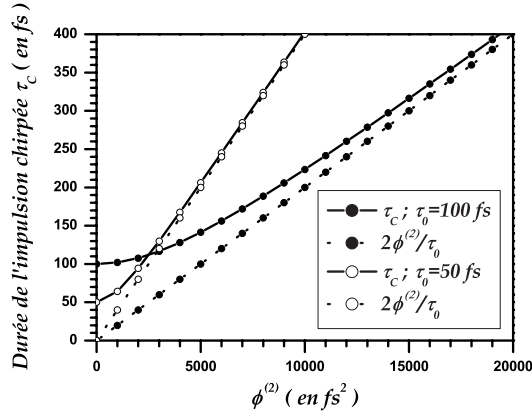


FIG. I.1 – Durée  $\tau_C$  de l'impulsion en fonction du chirp  $\phi^{(2)}$  pour des impulsions de 50 et 100 fs.

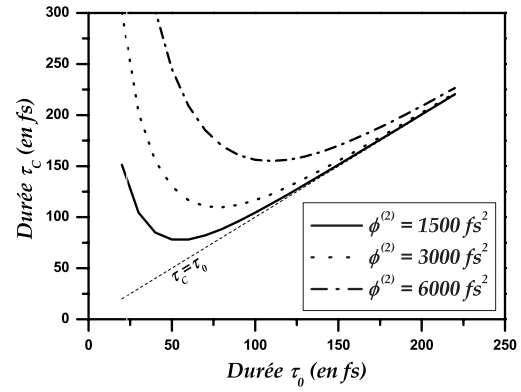


FIG. I.2 – Durée  $\tau_C$  de l'impulsion en fonction de la durée initiale  $\tau_0$  pour différentes valeurs du chirp

La variation de la fréquence au cours de la durée de l'impulsion est schématisée sur le diagramme I.3 qui est une représentation temps-fréquence. Cette description temps-fréquence nous sera utile pour comprendre les mécanismes d'interaction dans le chapitre II.2.2, où nous examinerons la propagation d'une impulsion chirpée.

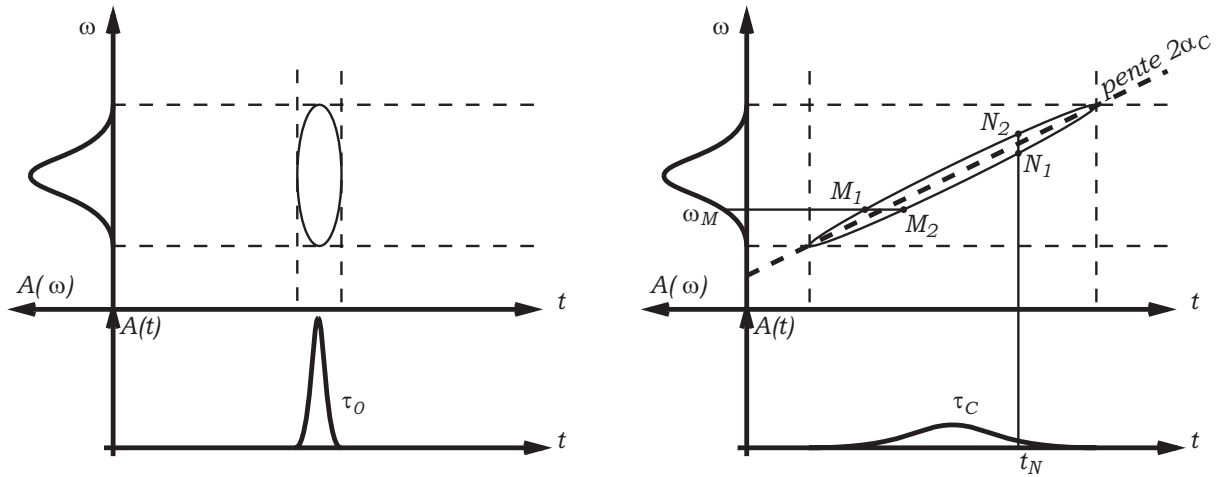


FIG. I.3 – Représentation temps-fréquence d'une impulsion limitée par transformée de Fourier (à gauche) et d'une impulsion à dérive de fréquence (à droite) : Dans le cas limité par transformée de Fourier toutes les composantes spectrales arrivent au même instant. En présence d'un chirp, une fréquence donnée  $\omega_M$  est présente sur un intervalle de temps entre les points  $M_1$  et  $M_2$ ; à un instant  $t_N$  l'impulsion contient des fréquences comprises dans l'intervalle spectral  $N_1N_2$ . Le paramètre de chirp  $2\alpha_C$  est la pente du grand axe de l'ellipse  $A(t, \omega) = C^{te}$ . Le diagramme donné en exemple correspond à un chirp positif, c'est-à-dire un glissement de la fréquence instantanée du rouge vers le bleu.

### I.1.2 Effet Kerr

Le cristal de Ti:Saphir, utilisé comme milieu à gain dans l'oscillateur, présente un effet Kerr important. Cette non linéarité du troisième ordre, se manifeste par un indice de réfraction qui dépend linéairement de l'intensité du laser selon :

$$n(I(\vec{r}, t)) = n_0 + n_2 I(\vec{r}, t) \quad (\text{I.9})$$

Lorsqu'un milieu Kerr est éclairé avec un faisceau de profil transverse gaussien, la variation d'indice en fonction de la coordonnée radiale se comporte comme une lentille, dite lentille de Kerr, qui modifie le waist des faisceaux de haute intensité (figure I.4). Suivant le signe du coefficient  $n_2$ , on peut se trouver en présence d'une lentille Kerr convergente ( $n_2 > 0$ ) ou divergente.

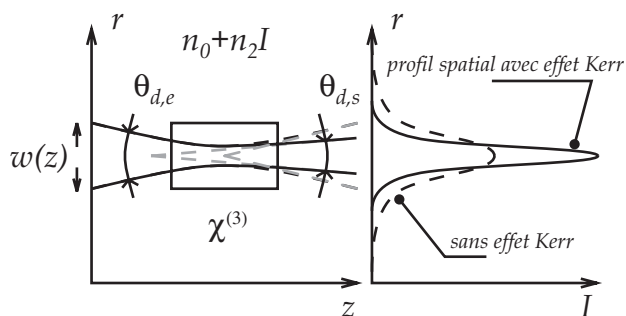


FIG. I.4 – Effet de la lentille Kerr sur le profil spatial : En présence d'effet Kerr (avec  $n_2 > 0$ ) la divergence du faisceau en sortie du matériau est plus petite qu'à l'entrée  $\theta_{d,e} < \theta_{d,s}$ .

Comme vu dans l'équation I.9,  $n$  dépend également du temps, l'effet Kerr agit ainsi également sur le comportement temporel de l'impulsion. Donc la fréquence instantanée, définie comme  $\omega_i(t) = \frac{\partial \varphi}{\partial t} \propto \frac{\partial I}{\partial t}$ , varie au cours du temps (figure I.5). Ceci a pour conséquence d'enrichir le spectre. D'autre part, autour du maximum en intensité de l'impulsion, la fréquence varie linéairement, et l'automodulation de phase se comporte comme un chirp effectif de même signe que  $n_2$ .

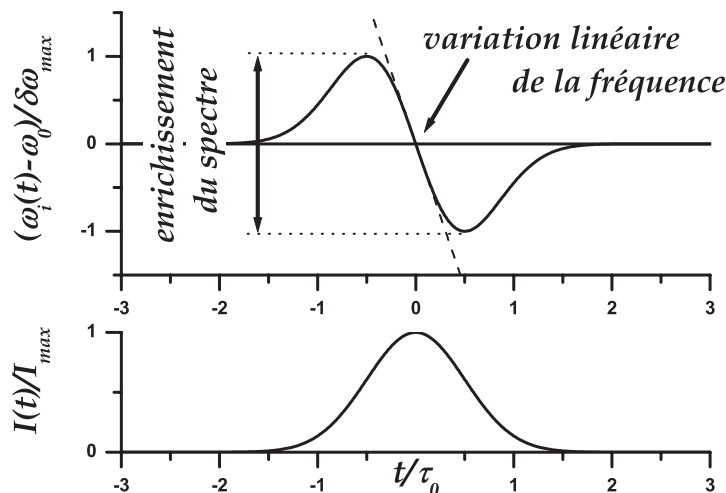


FIG. I.5 – Automodulation de phase due à l'effet Kerr ( $n_2 < 0$ ) : L'excursion en fréquence  $\delta\omega = \omega_{i,max} - \omega_{i,min}$  conduit à un enrichissement du spectre.

### I.1.3 Fonctionnement de l'oscillateur

Le générateur d'impulsions laser ultracourtes est constitué d'un oscillateur femtoseconde (fig. I.6) développé au sein du laboratoire. Il est composé d'une cavité linéaire en Z, fermée par les miroirs  $M_1$  et  $M_2$ . Un laser de pompe 5W à 532 nm (Millenia Spectra Physics) est injecté dans la sous cavité  $M_3M_4$ . Ce laser de pompe réalise l'inversion de population dans le milieu amplificateur qui est un barreau de Ti:Saphir taillé à Brewster. D'autre part nous trouvons deux constituants propres au fonctionnement de ce laser en mode impulsif : le compensateur à prisme et la fente Kerr.

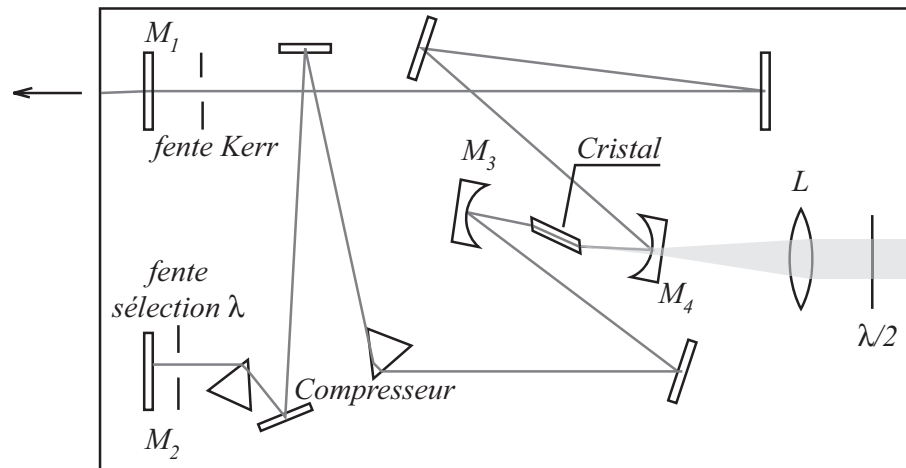


FIG. I.6 – Schéma de l'oscillateur femtoseconde

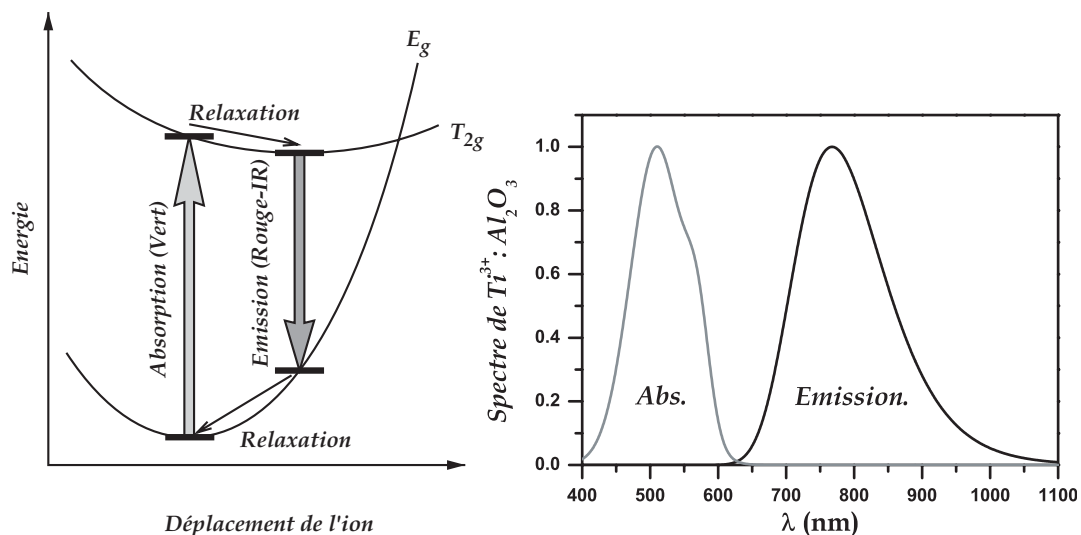


FIG. I.7 – Niveaux d'énergie et spectre de l'ion  $Ti^{3+}$  : A gauche : Diagramme simplifié des niveaux d'énergie associés aux configurations de l'ion  $Ti^{3+}$  dans le cristal de saphir (modélisable par un système à quatre niveaux). A droite : Allure des spectres d'émission et d'absorption. La bande d'émission couvre plus de 200 nm (quelques femtosecondes).

Le cristal de Ti:Saphir compte parmi les plus utilisés dans les lasers femtosecondes. Les deux caractéristiques essentielles de ce matériau sont une grande largeur d'émission spectrale (plusieurs dizaines de nanomètres) et l'existence d'une non linéarité Kerr du troisième ordre qui se manifeste à haute intensité par une modification de l'indice de réfraction. La grande largeur spectrale permet de générer et d'amplifier des impulsions courtes dont le spectre couvre quelques fractions de la bande d'émission de Ti:Saphir (figure I.7). De plus comme toute la bande n'est pas utilisée, il est possible de sélectionner la longueur d'onde centrale des impulsions, sur une grande gamme d'accordabilité. D'autre part, comme les bandes d'absorption et d'émission sont nettement distinctes, on peut réaliser un pompage colinéaire. L'ensemble de ses propriétés fait que l'on utilise aussi bien le titane-saphir pour les lasers continus, que picosecondes et femtosecondes.

Le fonctionnement de l'oscillateur en impulsion femtoseconde est le suivant (pour le principe détaillé se reporter à [25, 26]) : l'obtention d'impulsions ultracourtes nécessite que plusieurs conditions soient réalisées. Il faut un grand nombre de modes longitudinaux qui oscillent simultanément, mutuellement en phase et présentant du gain (amplification) sur une large gamme spectrale. Le cristal procure un gain sur une large bande, mais le fait que l'on dispose d'une large bande ne suffit pas à obtenir des impulsions courtes. Même si le mode impulsionnel peut être assuré, il n'est pas garanti. En effet, le régime continu peut subsister. Il faut donc ajouter un élément qui permet de discriminer les deux modes de fonctionnement. Il existe de nombreux dispositifs permettant d'isoler le mode impulsionnel (absorbant saturable, modulateur acousto-optique, ...). Le principe de fonctionnement commun à tous ces systèmes, consiste à introduire des pertes dans la cavité qui discriminent le mode continu en faveur du mode impulsionnel. Dans notre cas, nous utilisons l'effet Kerr du cristal de saphir. Si on insère une fente réglable dans la cavité, on peut en fermant celle-ci introduire des pertes sur le mode continu tout en préservant le mode impulsionnel qui a une taille de tache focale (ou waist) de section plus réduite après le cristal (figure I.8).

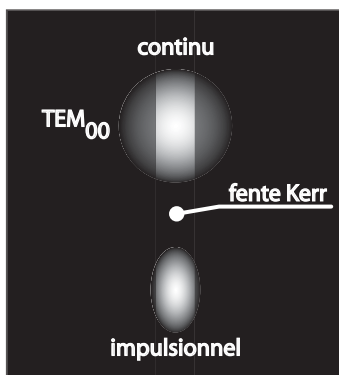


FIG. I.8 – Modes transverses au niveau de la fente Kerr : *Le faisceau est inchangé selon la direction sagittale, et plus étroit que le mode continu dans la direction tangentielle. Le blocage de mode par fente Kerr est un effet purement géométrique et joue le rôle d'un absorbant saturable rapide, introduisant plus de pertes sur le mode continu ( $TEM_{00}$ ) que sur le mode impulsionnel.*

Le passage du mode continu au mode pulsé se fait en perturbant la cavité (en donnant un coup bref sur la dalle optique). Les pics d'intensité qui en résultent, déclenchent l'effet Kerr. L'ensemble cristal-fente Kerr joue le rôle d'un absorbant saturable rapide qui assure le blocage de mode et qui entretient l'oscillation en régime d'impulsion. La compétition entre les deux modes de fonctionnement cesse grâce à la sélection par le gain.

Cependant du fait de la grande largeur spectrale associée aux impulsions femtosecondes, celles-ci sont extrêmement sensibles à la phase spectrale accumulée au cours des allers-retours qu'elles effectuent dans la cavité. Afin d'obtenir des impulsions les plus courtes possibles, il faut compenser le chirp à l'aide d'une paire de prismes pour assurer l'oscillation des modes longitudinaux en phase. Cette paire de prismes permet d'annuler le second ordre de la phase introduite sur un aller-retour par les effets cumulés de la dispersion et de l'automodulation de phase. Les ordres supérieurs ne sont pas compensés, mais leurs effets restent faibles pour les durées d'impulsions utilisées ici.

$$\phi''_{0,\text{Compensateur à Prismes}} + \phi''_{0,\text{Automodulation de Phase}} + \phi''_{0,\text{Eléments Optiques}} = 0 \quad (\text{I.10})$$

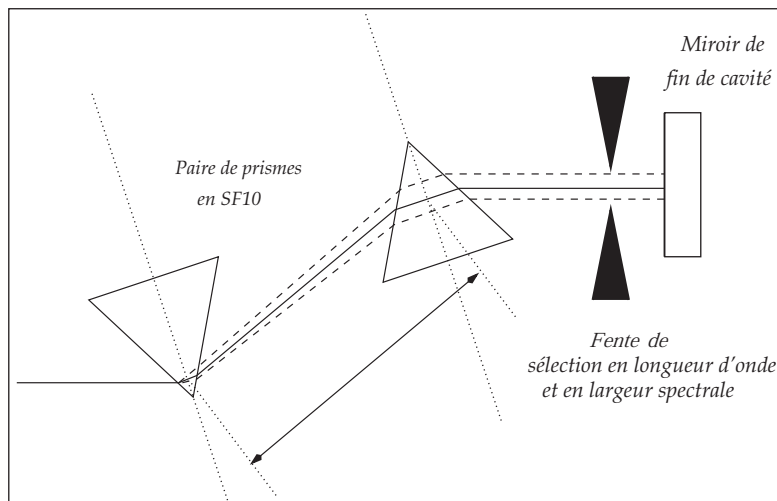


FIG. I.9 – Compensateur à prismes en double passage et sélection de la largeur et de la longueur d'onde centrale

En modes bloqués, l'oscillateur délivre des impulsions dont la durée peut varier entre 80 et 120 fs, avec une cadence de répétition de 76 MHz. La longueur d'onde centrale du spectre peut être accordée entre 760 et 820 nm (limite fixée par la bande passante des miroirs utilisés). La puissance moyenne délivrée en sortie est de 400 mW, correspondant à une énergie par impulsion de 5 nJ (tableau I.1).

Oscillateur femtoseconde	
Durée (FWHM en intensité)	80-120 fs
Taux de répétition	76 MHz
Puissance moyenne	400 mW
Energie par impulsion	5 nJ
Longueur d'onde centrale	760-820 nm
Largeur spectrale	~9 nm

TAB. I.1 – Caractéristiques de l'oscillateur femtoseconde : tableau récapitulatif

La figure I.10 donne une trace d'autocorrélation et un spectre typique de l'oscillateur à environ 795 nm. L'autocorrélation montre que le modèle gaussien est bien adapté pour décrire l'impulsion ; le fit quadratique en échelle logarithmique montre l'absence de piédestal jusqu'à moins d'un pourcent (niveau du bruit). L'accord est identique pour le spectre de cette impulsion.

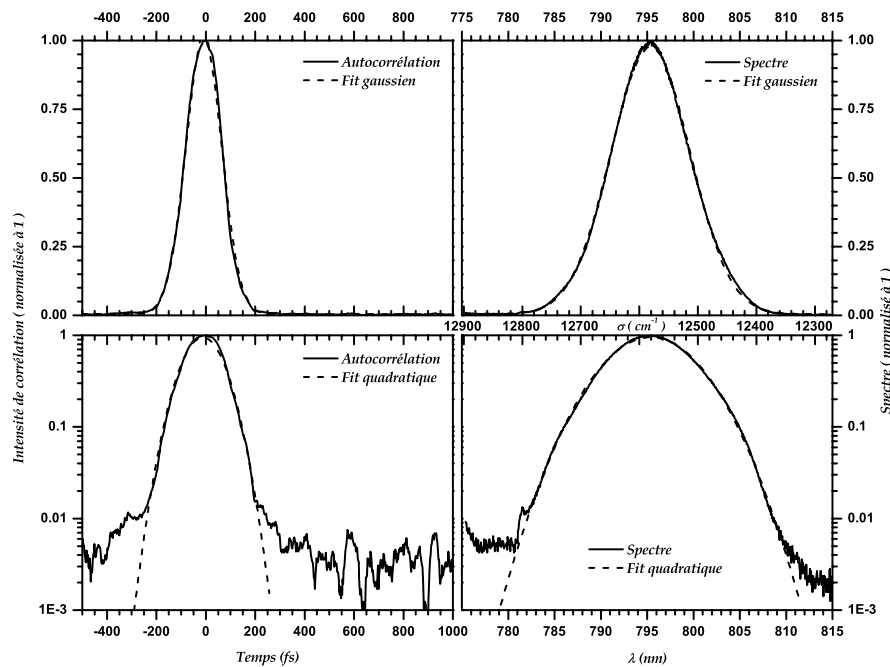


FIG. I.10 – Caractéristiques temporelles et spectrales de l'oscillateur

## I.2 Caractérisation des impulsions courtes

Afin de bien comprendre les interactions entre la matière et la lumière, on doit connaître avec précision les caractéristiques des impulsions excitatrices, ainsi que les profils temporels de ces impulsions après interaction. Pour caractériser les impulsions ou mesurer les profils temporels, on dispose de différentes méthodes, dont le domaine d'application dépend de l'information que l'on cherche à obtenir.

### I.2.1 Corrélation interférométrique du premier ordre

La technique la plus simple pour caractériser une impulsion, consiste à la faire interférer avec une impulsion connue, et à enregistrer le signal en fonction du retard variable  $\tau$  que l'on introduit entre ces deux impulsions. Le signal lumineux, collecté par exemple avec une photodiode est donné par l'équation I.11.



$$C_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2}^{(1)}(\tau) = \int |\mathcal{E}_1(t) + \mathcal{E}_2(t - \tau)|^2 dt = I_1 + I_2 + 2 \cos(\omega_L \tau) \int |\mathcal{E}_1(t)| |\mathcal{E}_2(t - \tau)| dt \quad (\text{I.11})$$

Dans le cas où  $\mathcal{E}_1 = \mathcal{E}_2$ , il s'agit de l'autocorrélation du premier ordre que l'on peut obtenir par exemple à partir d'un interféromètre de Michelson comme le montre la figure I.11.

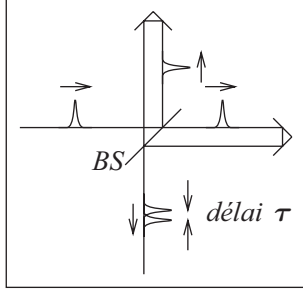


FIG. I.11 – Interféromètre de Michelson pour une autocorrélation interférométrique : L'impulsion à caractériser est divisée par une lame séparatrice BS. Le délai variable est obtenu en modifiant la longueur d'un des bras de l'interféromètre à l'aide d'une platine motorisée. Le signal est détecté par une photodiode.

Le contraste du signal est maximal lorsque les impulsions se recouvrent autour du délai nul, quand  $\tau \ll \tau_0$ . Pour une impulsion gaussienne (équation I.1) :

$$\begin{aligned} C_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_1}^{(1)}(\tau) &= 2I_1 + 2 \cos(\omega_L \tau) \int |\mathcal{E}_1(t)| |\mathcal{E}_1(t - \tau)| dt \\ &= 2I_1 \left[ 1 + \cos(\omega_L \tau) \exp\left(-\frac{\tau^2}{2\tau_0^2}\right) \right] \end{aligned} \quad (\text{I.12})$$

La figure I.12 donne un exemple de trace d'autocorrélation du premier ordre d'une impulsion de l'oscillateur. D'une manière générale, les méthodes interférométriques sont bien adaptées lorsque l'on s'intéresse à la présence de pieds dans les impulsions (rapport simple des amplitudes au lieu du carré pour les méthodes en intensité). En revanche pour une lecture directe de l'information sur la durée, il est plus aisé d'effectuer une corrélation intensimétrique.

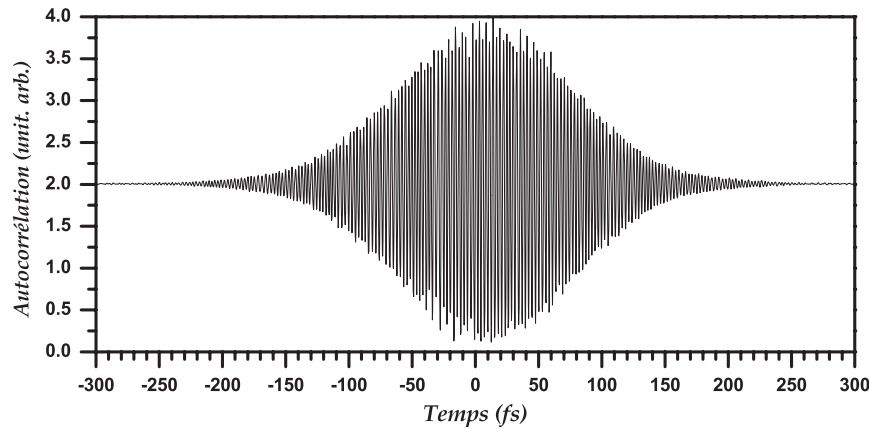


FIG. I.12 – Corrélation interférométrique du premier ordre de l'oscillateur : La largeur à mi-hauteur (FWHM) est de 157 fs et la période d'oscillation est de 2,67 fs (période optique)

## I.2.2 Corrélation intensimétrique du deuxième ordre

La corrélation intensimétrique du deuxième ordre est réalisée via un cristal (BBO) possédant une nonlinéarité d'ordre deux (figure I.13). Le signal est recueilli dans la direction d'accord de phase avec une intensité proportionnelle à :

$$C_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2}^{(2)}(\tau) = \int |\mathcal{E}_1(t)\mathcal{E}_2(t-\tau)|^2 dt = \int i_1(t)i_2(t-\tau)dt \quad (\text{I.13})$$

Dans le cas où  $\mathcal{E}_1 = \mathcal{E}_2$  avec une intensité de  $i_1(t) = i_0 e^{-2\frac{t^2}{\tau_0^2}}$ , on obtient un signal  $C_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_1}^{(2)}(\tau) \propto e^{-\frac{\tau^2}{\tau_0^2}}$ . Contrairement aux méthodes interférométriques, le signal apparaît sur fond noir. Le tableau I.2 rassemble les durées obtenues à partir des enveloppes gaussiennes des signaux d'autocorrélation. Les méthodes citées ci-dessus sont bien adaptées pour ob-

Autocorrélation 1 <sup>er</sup> et 2 <sup>ème</sup> ordre $C_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_1}^{(1)}$ et $C_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_1}^{(2)}$			
	FWHM	$\tau_{j=1,2}/\Delta\tau_{1/2,I(t)}$	$\Delta\lambda_{1/2,S(\omega)}$
$C_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_1}^{(1)}$	$\tau_1 = 2\sqrt{2\ln 2}\tau_0$	2	$\frac{\lambda_L^2}{\pi c} \frac{4\ln 2}{\tau_1}$
$C_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_1}^{(2)}$	$\tau_2 = 2\sqrt{\ln 2}\tau_0$	$\sqrt{2}$	$\frac{\lambda_L^2}{\pi c} \frac{2\sqrt{2}\ln 2}{\tau_2}$

TAB. I.2 – Table de correspondance des durées et largeur spectrale (cas gaussien) : Les durées  $\tau_1$  et  $\tau_2$  sont les durée FWHM des signaux de corrélation d'ordre 1 et 2. La largeur à 1/e est  $2\tau_0$ . La deuxième colonne donne le rapport entre  $\tau_1$  (ou  $\tau_2$ ), et la durée à mi-hauteur  $\Delta\tau_{1/2,I(t)}$  de l'intensité temporelle  $I(t)$ . La dernière colonne donne la largeur spectrale à mi-hauteur en longueur d'onde  $\Delta\lambda_{1/2,S(\omega)}$  du spectre en intensité  $S(\omega)$  centré à  $\lambda_L$  en fonction de  $\tau_1$  (ou  $\tau_2$ ).

tenir des informations temporelles usuelles telles que la durée, la symétrie des impulsions ou encore leur qualité (présence de piédestal, compression optimale, rebonds de  $\phi'''$ , ...). Lorsqu'on cherche plutôt une information sur la répartition temporelle des fréquences, il faut recourir à d'autres méthodes plus directes. Il est en effet possible de déduire des informations spectrales à partir de mesures dans le domaine temporel, mais au prix d'un traitement des données, qui rend le résultat moins immédiat, tel que XFROG.

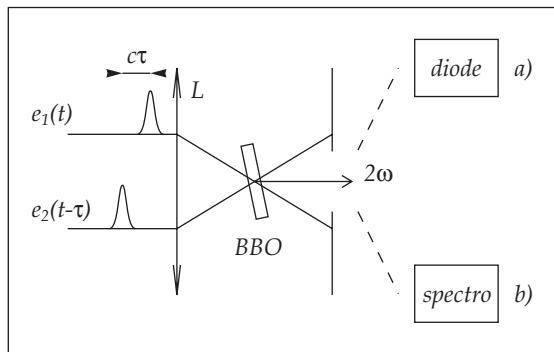


FIG. I.13 – Schéma de corrélation intensimétrique du second ordre a) et XFROG b)

### I.2.3 XFROG

Si on couple la méthode précédente de corrélation intensimétrique croisée à une analyse spectrale (figure I.13.b), on réalise un méthode dite XFROG (*Crossed(X) Frequency Resolved Optical Gating* [27]) qui permet d'obtenir une information de type temps-fréquence sur les impulsions à caractériser. Le spectre en amplitude de la somme de fréquence entre l'impulsion 1 et 2 est donné par :

$$A_{2\omega}(\omega, \tau) \propto \int \mathcal{E}_1(t - \tau)\mathcal{E}_2(t)e^{i\omega t} dt \quad (\text{I.14})$$

Si on prend comme champ  $\mathcal{E}_1$  une porte carrée de durée  $T_0$ , le signal :

$$A_{2\omega}(\omega, \tau) \propto \int_{\tau-T_0/2}^{\tau+T_0/2} \mathcal{E}_2(t)e^{i\omega t} dt \quad (\text{I.15})$$

correspond au contenu fréquentiel (Frequency Resolved) du champ  $\mathcal{E}_2$  entre les instants  $\tau - T_0/2$  et  $\tau + T_0/2$  défini par la porte (Optical Gating).

Prenons comme exemple, un XFROG entre une impulsion référence et une impulsion fortement chirpée produite à partir de cette impulsion référence. On peut montrer que le spectre en intensité  $S(\omega, \tau)$  mesuré en fonction du délai est donnée par :

$$S(\omega, \tau) = |A_{2\omega}(\omega, \tau)|^2 \propto e^{-2\left(\frac{\tau}{\tau_c}\right)^2} e^{-2\left(\frac{\omega - \alpha_c \tau}{2/\tau_c}\right)^2} \quad (\text{I.16})$$

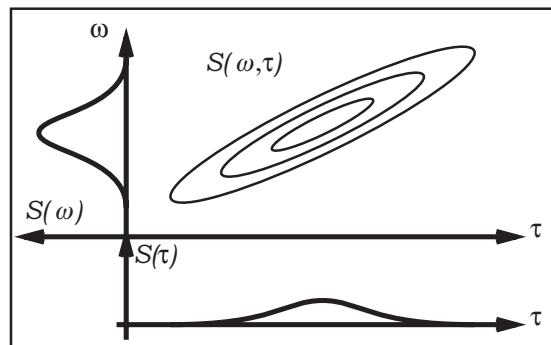


FIG. I.14 – Allure d'une trace XFROG pour une impulsion chirpée.

L'allure de la trace XFROG obtenue est celle de la figure I.14. On a une visualisation directe du chirp présent sur l'impulsion. On montre également que :

$$S(\tau) = \int S(\omega, \tau) d\omega = e^{-\frac{2\tau^2}{\tau_0^2 + \tau_c^2}} \quad (\text{I.17a})$$

$$S(\omega) = \int S(\omega, \tau) d\tau = e^{-\frac{\omega^2 \tau_0^2}{4}} \quad (\text{I.17b})$$

que l'on peut interpréter comme la corrélation entre les deux impulsions (I.17a) et comme le spectre de l'impulsion doublée (I.17b), chacune correspondant aux projections sur l'axe des temps ou des fréquences de l'intensité du signal XFROG. Un exemple de trace XFROG est donné dans la figure I.15.

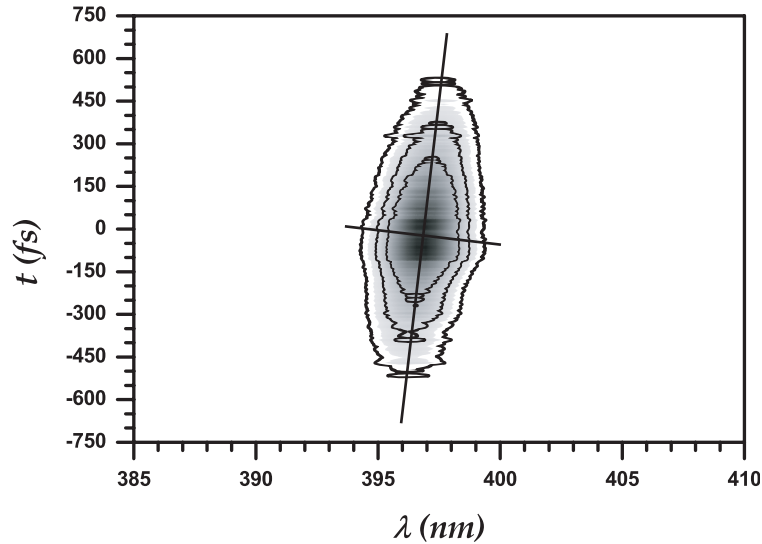


FIG. I.15 – Trace XFROG d’une impulsion chirpée par le système de mise en forme.

## I.2.4 Autres méthodes de caractérisation

Il existe de nombreuses autres méthodes permettant de caractériser les impulsions. Sans en détailler le principe de fonctionnement, mentionnons le dispositif de SPIDER [28] (*S*pectral *P*hase *I*nterferometry for *D*irect *E*lectric-Field *R*econstruction) dont nous disposons dans l’équipe. Comme le (X)FROG, il permet d’obtenir la phase spectrale des impulsions à partir de mélanges non linéaires de type somme de fréquence, couplés à une détection spectrale. Cette caractérisation est réalisée par une interférence entre le spectre de l’impulsion à caractériser et ce même spectre décalé en fréquence. Ce terme d’interférence contient l’information sur la phase.

## I.3 Amplificateur régénératif

Les impulsions issues de l’oscillateur n’ont pas une énergie suffisante pour atteindre les densités de puissance (ou les énergies) recherchées pour certaines applications. On est donc conduit à amplifier ces impulsions. Les gains que l’on peut atteindre avec plusieurs passages dans un milieu amplificateur sont de l’ordre de  $10^3$  à  $10^6$ , cependant il n’est pas possible d’amplifier directement les impulsions car on atteint rapidement les seuils de dommage des matériaux. Il est nécessaire d’abaisser l’intensité crête des impulsions pour éviter le claquage ( $<10\text{GW}/\text{cm}^2$ ).

### I.3.1 Principe de fonctionnement d’un CPA (Chirped Pulse Amplifier)

L’amplification dans le CPA se décompose en trois étapes (fig. I.16) : étirement, amplification et compression. Les étapes d’étirement et de compression sont similaires : en effectuant plusieurs passages dans des réseaux de diffraction I.17, on introduit un chirp qui

étire (respectivement comprime) l'impulsion à une durée de quelques dizaines de nanosecondes (étirement  $>10000$  la durée initiale). On diminue (resp. augmente) l'intensité crête des impulsions.

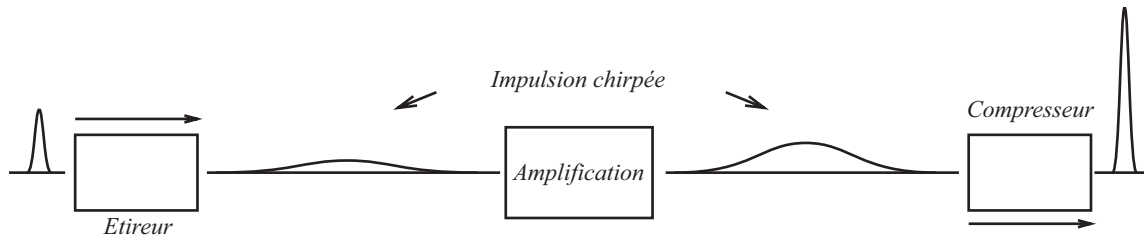


FIG. I.16 – Principe de fonctionnement d'un CPA

Les chirps introduits par ces deux systèmes sont de signes opposés, le changement de signe étant dû à un miroir sphérique qui introduit un grandissement unité négatif (-1) sur l'étireur. Le chirp introduit par une paire de réseaux s'écrit dans le cas général  $\phi'' = -Dz$  où  $D$  est relié au facteur dispersif des réseaux et  $z$  est la distance algébrique qui les sépare. Quand  $z < 0$ , ce que l'on obtient grâce au miroir sphérique,  $\phi'' > 0$  on étire l'impulsion. Pour  $z > 0$ , on est dans le cas  $\phi'' < 0$ . Si l'impulsion a été préalablement étirée, en général par un chirp de signe positif (étireur, milieu dispersif habituel, ...), on comprime cette impulsion. Le cas  $z = 0$  correspond à une ligne à dispersion nulle, notamment utilisée dans le dispositif de mise en forme.

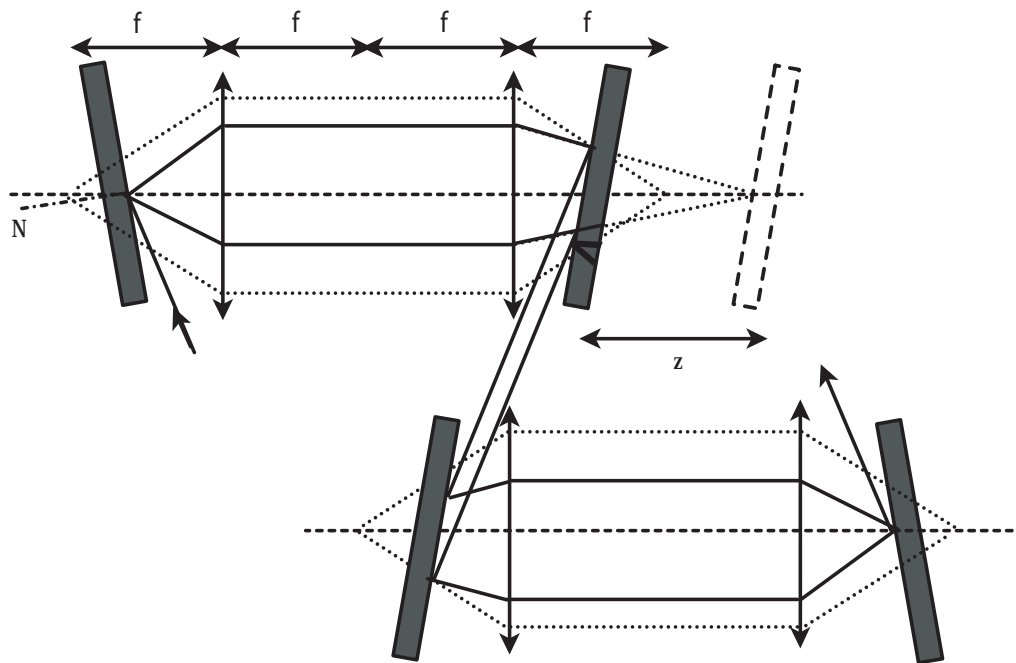


FIG. I.17 – Etireur du CPA : Le système est déplié et le miroir sphérique est représenté par une lentille. La position de l'image virtuelle du réseau d'entrée permet de jouer sur la distance  $z$  entre réseaux.



L'étape d'amplification proprement dite, s'effectue quant à elle dans une cavité en Z (fig. I.18) pourvue d'un cristal amplificateur de Ti :Saphir pompé par un laser Nd :YLF doublé intra cavité, déclenché à 1kHz délivrant des impulsions de 250 ns à 527 nm pour 10 W de puissance moyenne (10 mJ/impulsion). La cavité comprend également deux cellules de Pockel (PC1 et PC2), une lame quart d'onde et un film polariseur fin (TFP). Ces éléments polarisants ont pour but de contrôler les instants (fig. I.19) d'injection et d'extraction de l'impulsion étirée à amplifier. L'impulsion entre dans la cavité en se réfléchissant sur une des faces du cristal. L'impulsion passe à travers PC1 - non alimentée - et la lame quart d'onde. Comme elle passe deux fois dans la lame, l'impulsion a subit une rotation de  $\lambda/2$  et peut maintenant se propager à travers le barreau amplificateur (sous incidence de Brewster) et le TFP. Dès que l'impulsion quitte PC1, cette dernière est alimentée par une haute tension et se comporte comme une  $\lambda/4$ ; ainsi l'ensemble lame d'onde/cellule de Pockel est sans effet sur un double passage et l'impulsion est piégée dans la cavité. Aucune autre impulsion issue de l'oscillateur n'est amplifiée et le taux de répétition est ainsi abaissé de 76 MHz à 1 kHz. L'impulsion effectue de nombreux passages dans le résonateur (environ 20) et elle est chaque fois amplifiée. Quand PC2 est alimentée, elle agit comme une lame quart d'onde et tourne donc la polarisation de  $90^\circ$  en double passage. Ainsi l'impulsion est éjectée de la cavité par le TFP. Après compression, on dispose d'impulsions de l'ordre de 120 fs ayant une énergie voisine de 1 mJ.

La chronologie des événements qui constituent l'étapes d'amplification décrite précédemment et reportée sur le chronogramme I.19 :

- train d'impulsions issues de l'oscillateur,
- impulsion du laser de pompe du CPA,
- rampe de tension appliquée sur PC1,
- amplification de l'impulsion lors des passages successifs,
- rampe de tension appliquée sur PC2 (éjection).

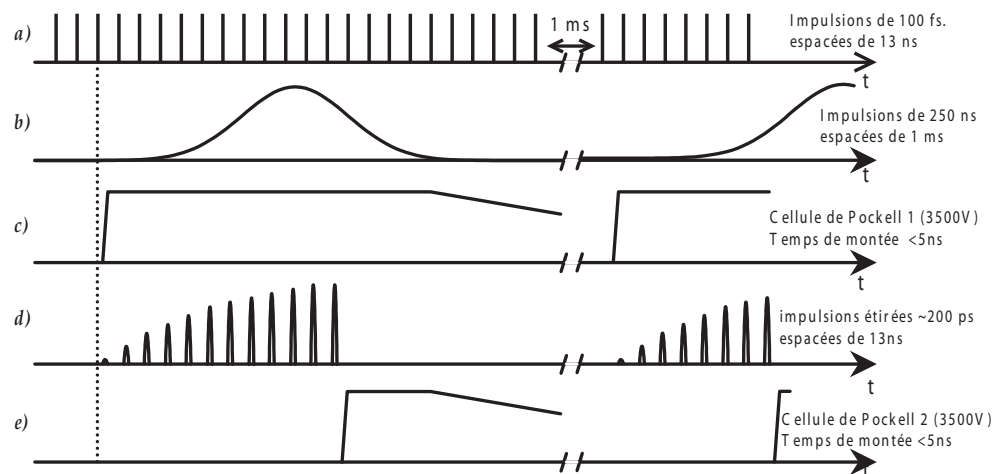


FIG. I.19 – Chronogramme du CPA

Les caractéristiques du CPA sont résumées dans le tableau I.3 et la figure I.20 donne une trace d'autocorrélation et un spectre typique du CPA à 795 nm.

Spitfire Spectra Physics	
Durée (FWHM en intensité)	100-140 fs
Taux de répétition	1 kHz
Puissance moyenne	800 mW
Energie par impulsion	0.8 mJ
Longueur d'onde centrale	780-810 nm
Largeur spectrale	$\sim 8,5$ nm

TAB. I.3 – Caractéristiques de l'amplificateur régénératif : tableau récapitulatif

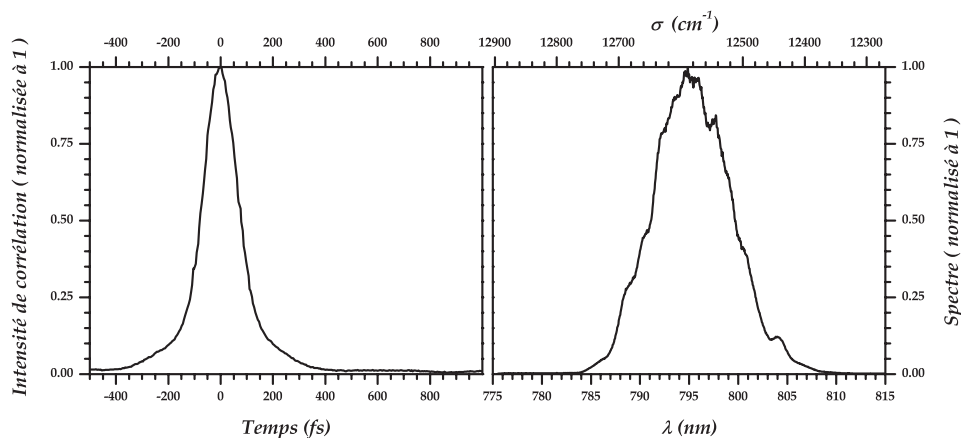


FIG. I.20 – Caractéristiques temporelles et spectrales du CPA

## I.4 Dispositif de mise en forme

Il existe une grande variété de phénomènes physiques qui sont sensibles à la forme temporelle des impulsions qui excitent le système [29–32]. De nombreuses méthodes permettent de changer l'amplitude, la phase et voire même la polarisation des impulsions laser. Parmi les dispositifs de mise en forme les plus courants [33], on peut citer les systèmes à miroirs déformables, les dispositifs acousto-optiques (AOM, AOPDF [34, 35]) et les cristaux liquides [36]. Tous ces systèmes permettent une mise en forme en amplitude et/ou en phase du spectre de l'impulsion. Le façonneur d'impulsions dont nous disposons est constitué d'une ligne 4f à dispersion nulle. La mise en forme en phase et en amplitude est introduite dans le plan de Fourier de la ligne 4f, par une double barrette de cristaux liquides de 640 pixels (SLM). La description qui va suivre sera brève, pour une explication détaillée voir la thèse d'A. Monmayrant [37].



## I.4.1 Principe de fonctionnement du façonneur d'impulsions : ligne 4f et SLM (Spatial Light Modulator)

### I.4.1.1 Etalement spatial du spectre

Pour pouvoir agir sur la phase et l'amplitude du spectre que l'on désire mettre en forme avec le SLM, il faut étaler spatialement les différentes composantes spectrales de l'impulsion. Cette opération est réalisée grâce à une ligne à dispersion nulle (fig. I.21). Le laser est tout d'abord envoyé sur un réseau de diffraction ( $G_1$ ) qui disperse angulairement les composantes spectrales. Le trajet du faisceau diffracté est replié par un miroir, avant d'être recollimaté par un miroir cylindrique. Le SLM se situe au plan de Fourier de la demi ligne (à  $2f$ ), c'est-à-dire le lieu géométrique où les différentes longueurs d'onde qui composent le spectre sont le plus séparées spatialement. Après mise en forme par le SLM qui agit comme un masque de phase, le spectre est recombinaé spatialement par une demi ligne identique à la première ( $2f$ ). En l'absence de mise en forme sur le SLM, l'impulsion de sortie a une durée identique à celle de l'impulsion en entrée (dispersion nulle).

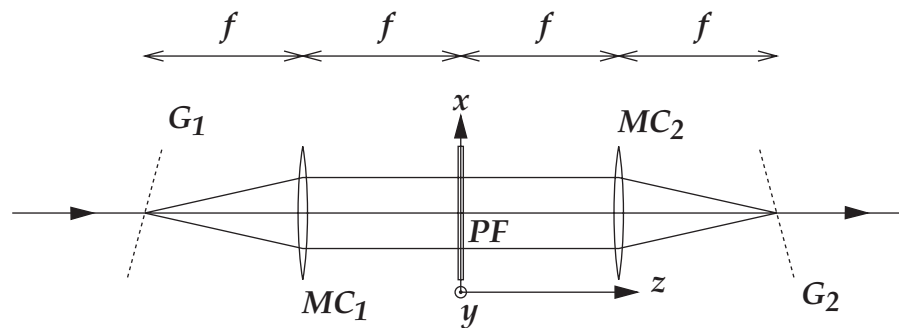


FIG. I.21 – Représentation schématique de la ligne à dispersion nulle ( $4f$ ) : *Le ligne est représentée dépliée.  $G_1$  et  $G_2$  sont les réseaux d'entrée et de sortie (en réflexion),  $MC_1$  et  $MC_2$  les miroirs cylindriques (représentés par des lentilles). Les réseaux sont aux foyers des miroirs, le SLM est au plan de Fourier (PF) du système.*

### I.4.1.2 Calcul du spectre dans le plan de Fourier

Nous allons décrire le principe de la méthode de calcul du spectre au plan de Fourier et en donner le résultat principal (d'après [38, 39]). Il s'agit de calculer pour un faisceau gaussien l'effet successif du réseau, de la propagation libre entre le réseau et la première lentille, l'effet de la lentille et enfin la propagation libre de la lentille jusqu'à son plan de Fourier.

Le réseau diffracte les composantes spectrales du faisceau dans une direction donnée par la relation fondamentale des réseaux  $\sin \theta_i + \sin \theta_d = k \frac{\lambda}{a}$ . Cette direction est modifiée par la lentille de sorte que  $X \simeq f\theta$ , où  $\theta$  est l'angle par rapport à l'axe optique. Soit la distance hors d'axe  $X$ ; l'écart à la position de la pulsation centrale  $X - X_0 = \alpha(\omega - \omega_0)$  dans le plan de Fourier est proportionnel à l'écart à la pulsation centrale, où  $\alpha$  est la constante de proportionnalité qui dépend des caractéristiques du réseau et du télescope. La position moyenne (barycentre) de chaque longueur d'onde est alors simplement reliée

à la position dans le plan. Cependant les calculs précédents ne tiennent pas compte de la nature gaussienne (mode transverse) du faisceau incident. Pour calculer la taille du waist au plan de Fourier, il faut calculer les intégrales de Fresnel-Kirchhoff pour les propagations libres, ou bien traiter la succession Propagation-Lentille-Propagation par la méthode des matrices ABCD appliquées aux rayons de courbures complexes  $q(z) = z + iz_R$  des faisceaux ( $z_R$  longueur de Rayleigh). Finalement on montre qu'on peut associer à la taille  $\Delta X$  (dans le plan de Fourier) du faisceau calculée par ces méthodes, un encombrement spectral  $\Delta\omega = \frac{\Delta X}{\alpha}$ . Quand on applique un masque  $M_X(X) = M(\frac{\omega'}{\alpha})$ , la fonction de transfert totale est donnée par :

$$H(\omega) \propto \int M\left(\frac{\omega'}{\alpha}\right) \exp\left[-\left(\frac{\omega - \omega'}{\Delta\omega}\right)^2\right] d\omega' \quad (\text{I.18})$$

Le spectre du champ de sortie est alors simplement le produit du spectre incident par la fonction de transfert :

$$\tilde{\mathcal{E}}_s(\omega) = H(\omega)\tilde{\mathcal{E}}_{in}(\omega) \quad (\text{I.19})$$

Dans le cas où l'on peut négliger la taille de chaque composante spectrale par rapport à la taille des pixels  $\Delta X \ll \Delta\ell_{pix}$ , la fonction de transfert  $H(\omega) = A(\omega)e^{i\varphi(\omega)}$  s'identifie simplement au masque  $H(\omega) = M(\omega)$  (on peut faire l'approximation  $\exp(-(\omega - \omega'/\Delta\omega)^2) \sim \beta\delta(\omega - \omega')$ ). Mais nous verrons dans le chapitre consacré à la compensation de la dispersion résonante, que l'expression I.18 joue un rôle très important pour expliquer l'artefact observé sur le spectre des impulsions mises en forme.

### I.4.1.3 Mise en forme en phase et amplitude

Le SLM situé au plan de Fourier de la ligne 4f est constitué d'une double barrette de cristaux liquides, chacune divisée en 640 pixels. Chaque pixel ( $2 \times 640$ ) est commandé individuellement par une tension. Les cristaux liquides constituent un milieu biréfringent dont l'indice extraordinaire dépend de la tension appliquée. Les axes propres sont à  $45^\circ$  de la polarisation du champ électrique du laser. Les deux barrettes sont en polarisations opposées, soit l'axe extraordinaire de l'une étant aligné sur l'axe ordinaire de l'autre, et réciproquement (fig. I.22).

Considérons le  $k$ ème pixel centré sur le pulsation  $\omega_k$  : le laser est initialement polarisé selon  $x$ . Après traversée du SLM d'épaisseur  $l$ , la composante  $u$  ( $\widehat{xOu} = \pi/4$ ) a accumulé une phase proportionnelle à  $n_o + n_e(V_{1,k})$ , tandis que la composante  $v$  ( $\widehat{xOv} = 3\pi/4$ ) a accumulé une phase proportionnelle à  $n_o + n_e(V_{2,k})$ . Si on dispose un polariseur en sortie, qui analyse selon la composante  $x$ , on trouve :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{(x,out)} &= \frac{1}{2}\mathcal{E}_{(x,in)} \left( e^{i\frac{2\pi l}{\lambda}(n_o+n_e(V_{1,k}))} + e^{i\frac{2\pi l}{\lambda}(n_o+n_e(V_{2,k}))} \right) \\ &= \mathcal{E}_{(x,in)} e^{i\frac{2\pi l}{\lambda}n_o} e^{i\frac{2\pi l}{\lambda}\frac{n_e(V_{1,k})+n_e(V_{2,k})}{2}} \cos\left(\frac{2\pi l}{\lambda}\frac{n_e(V_{1,k}) - n_e(V_{2,k})}{2}\right) \\ &= \mathcal{E}_{(x,in)} e^{i\frac{2\pi l}{\lambda}n_o} e^{i\varphi(V_{1,k},V_{2,k})} a(V_{1,k}, V_{2,k}) \end{aligned} \quad (\text{I.20})$$

avec  $\varphi(V_{1,k}, V_{2,k}) = \pi l(n_e(V_{1,k}) + n_e(V_{2,k}))/\lambda$ , et  $a(V_{1,k}, V_{2,k}) = \pi l(n_e(V_{1,k}) - n_e(V_{2,k}))/\lambda$

On peut donc contrôler indépendamment la phase  $\varphi(V_{1,k}, V_{2,k}) = \varphi(\omega_k)$  et l'amplitude transmise via  $a(V_{1,k}, V_{2,k}) = A(\omega_k)$  (terme en cosinus), en appliquant le couple de tensions  $(V_{1,k}, V_{2,k})$  approprié. Si on appelle  $\Delta\varphi_{i,k} = (n_e(V_{i,k}) - n_e(0))2\pi l/\lambda$  le déphasage introduit par la barrette  $i = 1, 2$  au pixel  $k$ , il faut alors connaître la variation de  $\Delta\varphi_{i,k}$  en fonction de  $V_{i,k}$ . Cette relation phase-tension est obtenue en réalisant la calibration du SLM, où l'on suppose que les pixels sont homogènes et alimentés par la même tension, c'est-à-dire que  $\Delta\varphi_i = f(V_i)$  (indépendant de  $k$ ). La mesure du déphasage revient à inverser l'équation I.20 dans le cas où l'un des déphasages est nul ou constant.

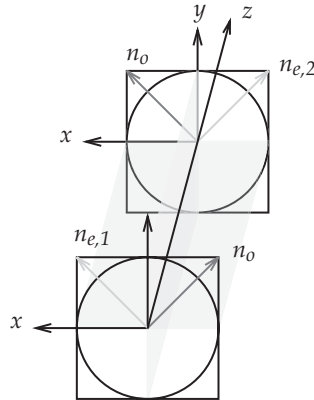


FIG. I.22 – Orientation relative des axes propres des deux barrettes

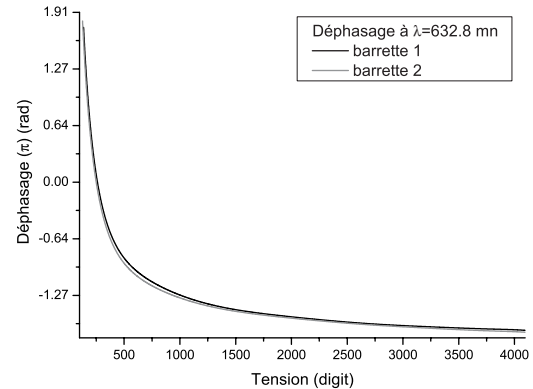


FIG. I.23 – Phase reconstruite en fonction de la tension (4096 niveaux de tension)

La calibration phase-tension est une étape délicate et cruciale pour obtenir un fonctionnement optimal de la mise en forme, c'est-à-dire la plus fidèle possible. La figure I.23 donne un exemple de correspondance phase-tension pour les deux barrettes qui composent le façonneur d'impulsion. Cette courbe est obtenue à la longueur d'onde de l'He-Ne <sup>a</sup> : 632,8 nm. A partir de ces données, il est possible de déduire la calibration pour n'importe quelle autre longueur d'onde de travail.

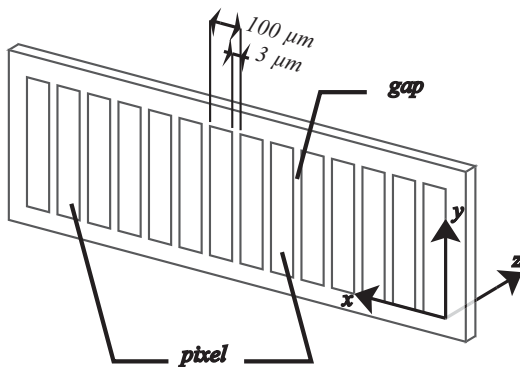


FIG. I.24 – Barrette du SLM : Les barrettes de cristaux liquides sont constituées de 640 pixels de 97  $\mu\text{m}$  de large, espacés de 3  $\mu\text{m}$  (gap)

<sup>a</sup>L'He-Ne est utilisé pour calibrer le SLM de la manière suivante : on éclaire le SLM avec l'He-Ne à 45° des axes propres et on analyse le signal avec un polariseur. On applique une tension sur le SLM et on mesure l'intensité. Le déphasage entre les deux composantes est reconstruit à partir de l'intensité recueillie après l'analyseur.

### I.4.2 Influence des pixels et des gaps

Les barrettes sont constituées de 640 pixels de  $97 \mu\text{m}$  de large qui sont espacés par un intervalle de  $3 \mu\text{m}$  appelé gap et qui n'est pas sensible à la tension appliquée sur les pixels (fig. I.24). Cette constitution discrète, pixellisée, conduit à l'apparition de phénomènes supplémentaires par rapport à la mise en forme recherchée (fig. I.25). Le premier des effets, concerne les pixels qui apparaissent en première approximation comme un réseau périodique, dont la période spatiale de  $100 \mu\text{m}$  correspond à une période de  $0,06 \text{ nm}$  du point de vue spectral (à  $800 \text{ nm}$ ). A ce réseau spectral est associé un réseau temporel d'une période de  $35,8 \text{ ps}$ . Ainsi quand on applique une mise en forme donnée, elle se retrouve en plus reproduite toutes les  $35,8 \text{ ps}$  avec des amplitudes décroissantes <sup>2</sup>.

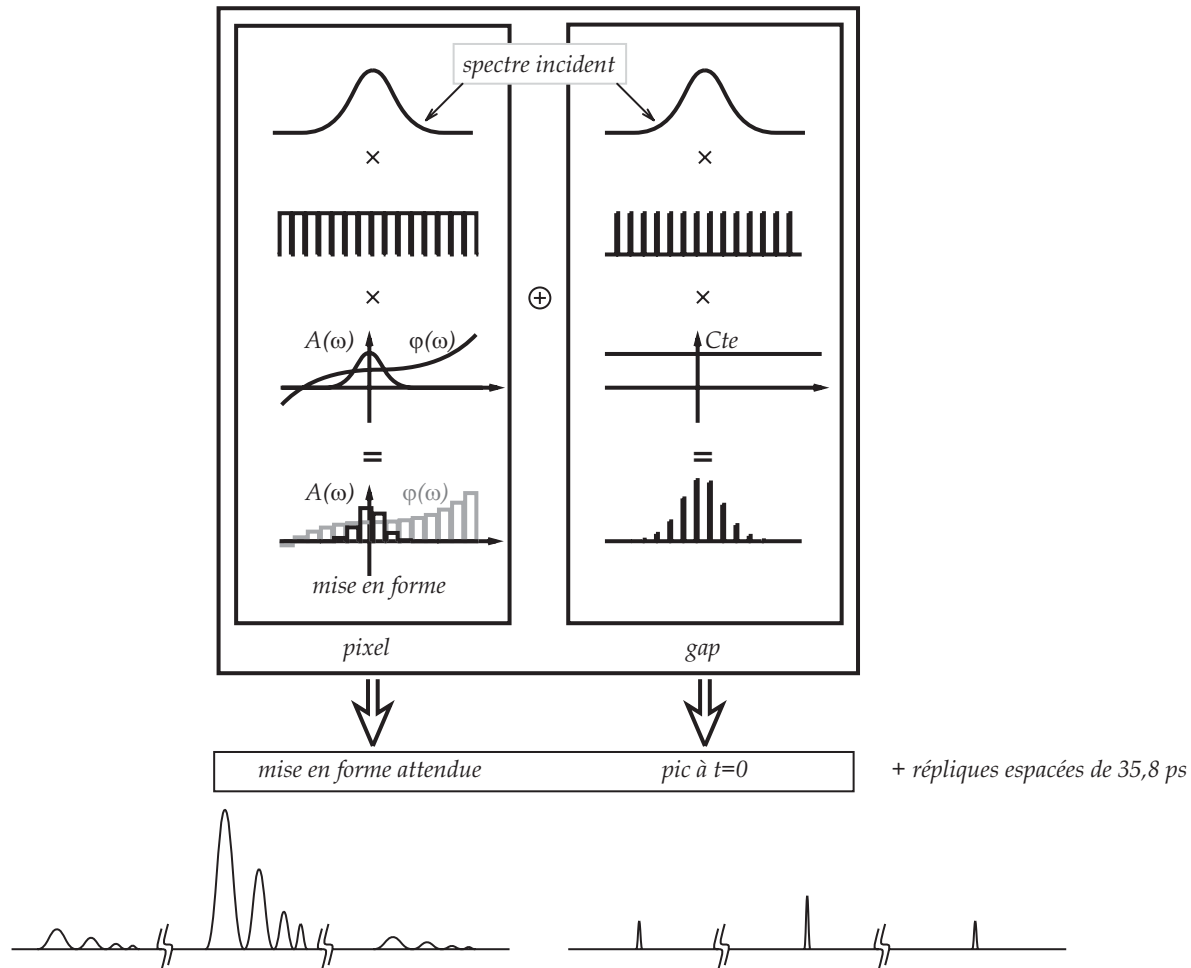


FIG. I.25 – Effets des pixels et des gaps : Décomposition du spectre total montrant la contribution des pixels (à gauche) et des gaps (à droite).

Le deuxième point concerne les gaps qui, bien qu'inactifs du point de vue de la mise en forme, laissent passer  $3,1\%$  ( $3 \mu\text{m}/97 \mu\text{m}$ ) de l'énergie incidente. Cette fraction

<sup>2</sup>L'amplitude des répliques est celle d'un sinus cardinal correspondant à la transformée de Fourier d'un pixel ou d'un gap unique

d'énergie se retrouve au délai nul sous forme d'une impulsion dont la durée est identique à la durée initiale. Bien que faible, ce "pic à  $t=0$ " peut interférer avec des mises en forme dont l'amplitude autour du délai nul est comparable. Il est malgré tout possible d'éliminer cet effet en programmant une mise en forme modifiée par un terme additionnel qui introduit une réplique en zéro de même amplitude mais en opposition de phase, ce qui annule la contribution des gaps.

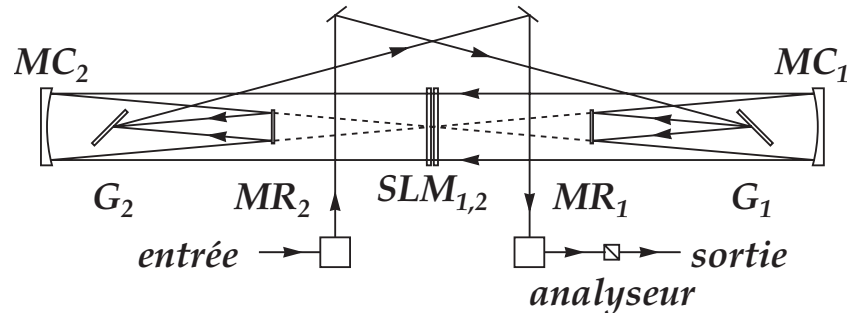


FIG. I.26 – Configuration du façonneur :  $G_1$  et  $G_2$  sont les réseaux d'entrée et de sortie,  $MC_1$  et  $MC_2$  les miroirs cylindriques. Dans un souci de compacité, la ligne est repliée par deux miroirs  $MR_1$  et  $MR_2$ . Les réseaux sont aux foyers des miroirs, le masque est au plan de Fourier (PF) du système où sont situées les deux barrettes de cristaux liquides  $SLM_1$  et  $SLM_2$ . La mise en forme désirée est récupérée après l'analyseur.

### I.4.3 Géométrie de la ligne 4-f

Parmi les différentes géométries possibles (collinéaires, U, S, ...), celle adoptée pour notre ligne à dispersion nulle est la configuration en X, représentée sur la figure I.26. Du fait du repliement de la ligne, les différents trajets du réseau d'entrée au premier miroir cylindrique, se font avec un léger angle par rapport à l'horizontale, ceci afin de permettre au faisceau recollimaté de passer au dessus du miroir de repli. Les caractéristiques du façonneur sont regroupées dans le tableau I.4.

Distance au plan de Fourier :	
- Miroir cylindrique	60 cm = $f$
- Réseau	52 cm
- Miroir de repli	26 cm
Réseau de diffraction :	
- Traits	2000/mm
- Angle (normale-axe optique)	$42,66^\circ \simeq \theta_{Littrow} - 10^\circ$ (à 800 nm)
Masque :	
- Résolution	0,06 nm/pixel
- Dynamique	12 bits

TAB. I.4 – Système de mise forme : Dimensions et caractéristiques



## I.5 Production de vapeur atomique - constitution du four

Après avoir présenté les différentes sources d'impulsions femtosecondes disponibles dans notre laboratoire, nous allons dans la dernière partie de ce chapitre nous pencher sur la production et les propriétés physiques des vapeurs atomiques d'alcalins et alcalino-terreux, qui nous servent de milieu d'étude pour les phénomènes de propagation.

### I.5.1 Vapeur atomique

#### I.5.1.1 Pression de vapeur saturante

Afin de générer et de contrôler l'épaisseur optique des vapeurs atomiques d'alcalins (Na,Rb) et alcalino-terreux (Ba) avec lesquelles le laser interagit, on utilise la variation de la pression de vapeur saturante  $p$ , avec la température  $T$ . On chauffe un échantillon d'alcalin généralement solide. La pression de vapeur saturante ne dépend que de la température et du matériau considéré ; elle fixe la densité à laquelle on travaille. Sa variation est donnée par la formule [40] :  $\log p = -A/T - B \log T + C \simeq -k \cdot a/T + b$  dont la forme approchée est celle que l'on trouve le plus souvent dans la littérature. Les valeurs des coefficients sont reportées dans le tableau I.5. La figure I.27 donne la pression de vapeur saturante en mm de mercure en fonction de la température pour de nombreux éléments chimiques. La densité  $n = p/kT$  varie avec la température et peut être aisément contrôlée sur une large gamme (fig. I.28). La distance moyenne  $d = n^{-1/3}$  entre atomes en fonction de la température, montre qu'il y a environ dix atomes de rubidium par unité de longueur d'onde à 500 K. Du fait de ce nombre d'atomes important (1000 par  $\lambda^3$ ), on peut considérer et traiter le milieu comme continu.

Elément	A	B	C	a	b
Na	5567	0,5	9,235	103300	7,553
K	4552	0,5	8,793	84900	7,183
Rb	4302	1,5	11,722	76000	6,976
Cs	4042	1,4	11,176	73400	6,949

TAB. I.5 – Coefficients A, B, C, a et b pour les alcalins ( $k = 0,05223$ )

#### I.5.1.2 Fraction de dimère

En raison de la forte densité (distances interatomiques relativement faibles) et de l'agitation thermique, il peut y avoir un nombre assez important de collisions à trois corps  $A + A + X \rightarrow A_2 + X$  pouvant conduire à la formation de dimères. Il faut donc évaluer la proportion monomère-dimère, afin de s'assurer que l'on ne travaille qu'avec des atomes. En effet, pour les dimères d'alcalins, les transitions électroniques entre le fondamental et le premier état excité sont différentes pour l'atome et le dimère, mais suffisamment proches

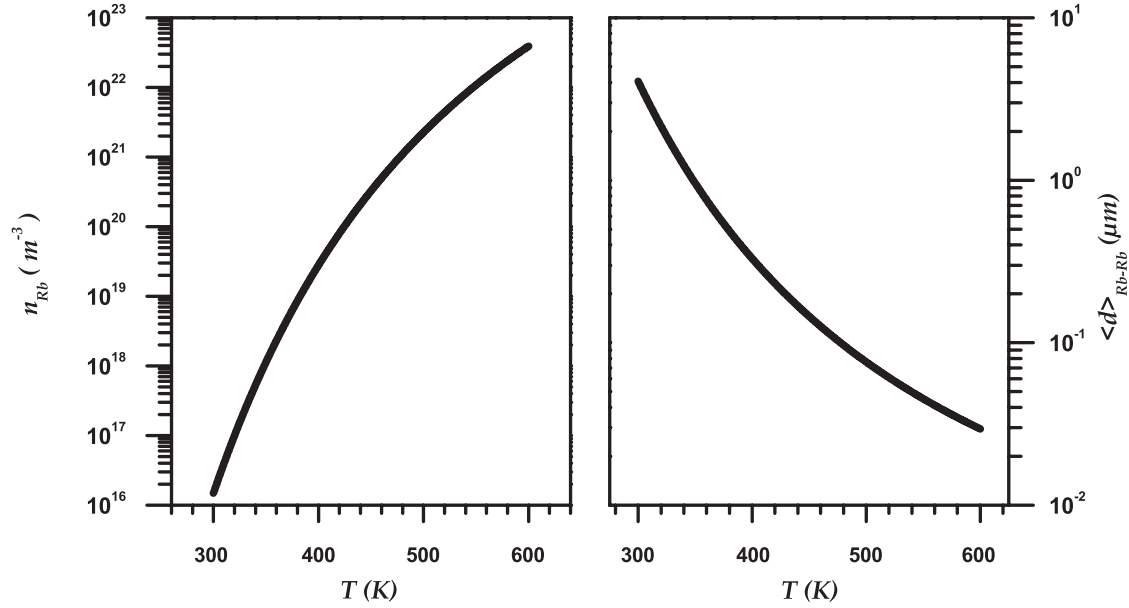


FIG. I.28 – Densité et distance moyenne entre atomes de rubidium en fonction de la température

(Rb :  $12582,4 \text{ cm}^{-1}$  et  $12820,1 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\text{Rb}_2$  :  $14665,4 \text{ cm}^{-1}$ ) pour que la dispersion due à la présence de molécules affecte la contribution des atomes seuls. Il faut donc évaluer la proportion de dimère dans les gammes de températures auxquelles on se place pour produire la vapeur dense.

Cette proportion de dimère par rapport aux atomes dans l'équilibre  $A + A \rightleftharpoons A_2$  est donnée par la loi d'action de masse [41, 42] :

$$\frac{n_A^2}{n_{A_2}} = \frac{(Z_A^2/\lambda_A^6)}{(Z_{A_2}/\lambda_{A_2}^3)} \quad (\text{I.21})$$

où  $n_A$  et  $n_{A_2}$  sont les densités de monomère et de dimère,  $\lambda_A$  et  $\lambda_{A_2}$  les longueurs d'ondes thermiques associées à chaque espèce, et  $Z_A$  et  $Z_{A_2}$  sont les fonctions de partition.

La fraction  $\xi$  de dimère qui nous intéresse est donnée par :

$$\xi = \frac{n_{A_2}}{n_A} = \frac{2Z_{A_2}n_A}{(2I+1)^2} \left( \frac{\pi\hbar^2}{m_A k_B T} \right)^{3/2} \quad (\text{I.22})$$

où

$$Z_{A_2} = \sum_{v,J} g_{v,J} e^{-\frac{E_{v,J}}{k_B T}} \quad (\text{I.23})$$

On peut prendre le développement suivant pour les  $E_{v,J}$  :

$$E_{v,J} = \sum_{\alpha,\beta} Y_{\alpha\beta} \left( v + \frac{1}{2} \right)^\alpha [J(J+1)]^\beta \quad (\text{I.24})$$

où les  $Y_{\alpha\beta}$  sont les coefficients de Dunham [43] et  $Y_{00}$  est l'énergie de dissociation de  $A_2$ .



Si on se reporte au tableau I.6, on constate que la valeur relative de la pression de vapeur saturante du dimère est inférieure au pourcent de monomère en dessous de 600 K.

La vapeur atomique qui est produite dans le four est donc constituée essentiellement d'atomes, qui avec les atomes du gaz tampon (Ar à 15 mbar), constituent le milieu dans lequel nous allons faire propager et avec lequel vont interagir les impulsions laser.

T(K)	$p_{Na}$	$p_{Na_2}$	$p_{Na_2}/p_{Na}$	$p_{Rb}$	$p_{Rb_2}$	$p_{Rb_2}/p_{Rb}$
250	-	-	-	5,901E-10	7,267E-16	1,231E-06
275	-	-	-	1,994E-08	1,092E-13	5,476E-06
300	-	-	-	3,307E-07	7,046E-12	2,131E-05
325	7,835E-10	5,751E-14	7,340E-05	4,160E-06	2,231E-10	5,363E-05
350	1,366E-08	2,617E-12	1,916E-04	3,417E-05	4,217E-09	1,234E-04
375	1,542E-07	5,366E-11	3,480E-04	2,120E-04	5,294E-08	2,497E-04
400	1,265E-06	8,140E-10	6,435E-04	1,032E-03	4,767E-07	4,619E-04
425	7,998E-06	8,846E-09	1,106E-03	4,097E-03	3,371E-06	8,228E-04
450	4,108E-05	7,246E-08	1,764E-03	1,390E-02	1,831E-05	1,317E-03
475	1,770E-04	4,695E-07	2,653E-03	3,905E-02	8,112E-05	2,077E-03
500	6,558E-04	2,499E-06	3,811E-03	1,097E-01	3,062E-04	2,791E-03
550	6,232E-03	4,407E-05	7,072E-03	5,883E-01	3,043E-03	5,173E-03
600	3,893E-02	4,750E-04	1,400E-02	2,365E+00	2,093E-02	8,850E-03
650	1,948E-01	3,514E-03	1,804E-02	7,618E+00	1,055E-01	1,385E-02
700	7,498E-01	1,933E-02	2,578E-02	2,063E+01	3,961E-01	1,920E-02
750	2,402E+00	8,348E-02	3,475E-02	5,010E+01	1,134E+00	2,263E-02
800	6,606E+00	2,959E-01	4,479E-02	1,024E+02	2,658E+00	2,596E-02
850	1,601E+01	8,921E-01	5,572E-02	1,820E+02	6,170E+00	3,390E-02
900	3,496E+01	2,360E+00	6,751E-02	3,493E+02	1,790E+01	3,407E-02
950	7,038E+01	5,623E+00	7,989E-02	5,500E+02	4,070E+01	7,400E-02
1000	1,330E+02	1,231E+01	9,256E-02	-	-	-
1100	3,892E+02	4,616E+01	1,186E-01	-	-	-

TAB. I.6 – Pression de vapeur saturante monomère-dimère-fraction pour Na et Rb

## I.5.2 Constitution du four

Le four, mis à disposition par P.Pillet et J.Chevillard du Laboratoire Aimé Cotton, est composé d'un tube (heat pipe) muni de deux fenêtres à ses extrémités (figure I.29). Une barquette massive percée de part et d'autre pour laisser entrer le faisceau laser, est placée au milieu du tube pour assurer un confinement de la vapeur sur la longueur de la barquette. Afin de prévenir un échauffement important et également éviter un dépôt d'alcalins au niveau des fenêtres, une circulation d'eau assure le refroidissement des extrémités du tube par des serpentins en cuivre placés quelques centimètres avant le raccordement des flasques des fenêtres. Le milieu du tube, sur un tiers de sa longueur totale, est placé dans une enceinte réfractaire (le four proprement dit) qui peut être portée à 1000°C par chauffage électrique (1kW). Il y a donc un fort gradient de température au voisinage des extrémités de la barquette. Le gaz tampon introduit dans le tube est de l'argon sous une pression de 10 à 20 mbar. Il assure une bonne thermalisation entre les parois du tube et la vapeur d'alcalin : la diffusion de la vapeur est confinée aux zones les plus chaudes. Comme

la pression, et donc la densité, varie rapidement avec la température, plus la barquette est massive et garde une température constante sur sa longueur, plus le profil de densité sera plat et homogène au centre, et terminé de manière abrupte aux extrémités et donc bien défini. La grande inertie thermique de l'enceinte réfractaire et la grande sensibilité de la pression de vapeur en fonction de la température imposent de contrôler très précisément la température du four. Ceci est réalisé en utilisant un système d'asservissement de type PID (Proportionnel Intégrateur Dérivateur) pour commander la puissance de chauffage de four dont la température est mesurée par un thermocouple (au sein du matériau réfractaire). On parvient à stabiliser la température à un degré près, mais l'obtention d'une meilleure précision est difficile à réaliser en raison de la grande masse thermique du four. Une autre solution consiste à appliquer une puissance constante (calibrée par avance) et à attendre la stabilisation de la température autour du point de fonctionnement. Le principal inconvénient de cette méthode est que le temps de stabilisation peut aller jusqu'à plusieurs heures.

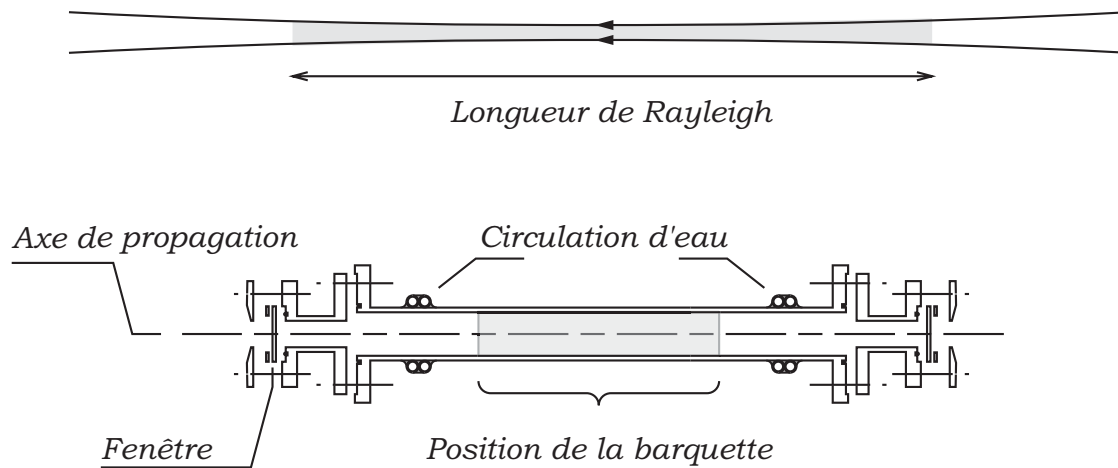


FIG. I.29 – Schéma du four

Les dimensions du four étant fixées, on adapte le faisceau laser de sorte que la longueur de Rayleigh soit supérieure à la longueur de la barquette soit 9 cm (figure I.29). Ceci permet d'éviter une variation de l'intensité crête à différentes positions dans le four.

## Chapitre II

# PROPAGATION DANS UN SYSTÈME À DEUX NIVEAUX

La lumière émise par les sources lasers, que nous avons décrites dans le chapitre précédent, est une onde électromagnétique qui se propage dans l'espace. Cette impulsion est caractérisée par un champ électrique dépendant de l'espace et du temps. La propagation dans l'espace libre, dans une cavité optique ou dans un milieu transparent est bien connue. Dans ce chapitre, nous allons chercher à décrire l'évolution spatio-temporelle de ces ondes électromagnétiques lorsqu'elles interagissent avec un milieu constitué d'un ensemble d'atomes, modélisés par des systèmes à deux niveaux, dont les transitions se situent généralement dans la domaine optique (de l'infrarouge aux ultraviolets de basse énergie). L'équation de propagation du champ est une conséquence des équations de Maxwell. Par rapport à la propagation libre (équations de Maxwell sans second membre), la propagation dans un milieu optique fait intervenir la polarisation atomique (comme terme source des équations de Maxwell). Cette polarisation est décrite, dans le cadre de la mécanique quantique, à partir de la matrice densité du système dont l'évolution obéit à l'équation de Liouville (Bloch). Il existe alors un couplage entre l'équation de propagation des impulsions et l'évolution des quantités atomiques (populations, cohérences). Dans presque toutes les expériences qui mettent en jeu des dipôles et des rayonnements électriques, il faut également prendre en compte les propriétés de transport du rayonnement à travers le milieu (constitué des dipôles).

La propagation des impulsions optiques à travers les milieux atomiques résonants a été étudiée activement depuis les années 70. Parmi les études réalisées, le théorème quantique (non linéaire) de l'aire dérivé par McCall&Hahn [7,8] est un élément clé. Ce théorème conduit à l'apparition de phénomènes tels que l'absorption sans perte dans un absorbant, le fractionnement (scission ou *breakup*) d'une impulsion intense en un nombre particulier d'impulsions d'aires plus petites que l'aire initiale ou encore le phénomène d'amplification par rétrécissement (*peak amplification*). La loi de Beer-Lambert qui décrit l'absorption linéaire peut en être vue comme un cas particulier. Pour des impulsions ultracourtes dont la durée caractéristique est très petite devant l'inverse de la largeur spectrale de la raie d'absorption, l'absorption totale est négligeable. L'effet principal est alors la distorsion de l'enveloppe du champ électrique incident due aux effets de dispersion. Ces effets résultent entièrement de la dépendance en fréquence de la phase spectrale introduite par le milieu. En régime de champ faible, l'évolution temporelle des impulsions courtes est alors contrainte à la fois par le théorème de McCall&Hahn qui impose que l'aire algébrique de l'impulsion tend exponentiellement vers zéro avec la distance de propagation, et aussi par

la conservation de l'énergie (absorption totale négligeable). Pour satisfaire simultanément ces deux contraintes, l'impulsion développe un profil temporel oscillant. Le cas des impulsions limitées par transformée de Fourier en champ faible, a été étudié par Crisp et Grischkowsky [6, 44].

En marge de ces études, peu de travaux portent sur les impulsions qui ne sont pas limitées par transformée de Fourier. Il a pourtant été démontré une forte dépendance des effets de dispersion avec la phase (spectrale/temporelle) des impulsions incidentes [45]. Le cas particulier des impulsions à dérive de fréquence est particulièrement intéressant, puisque de nombreux systèmes peuvent être manipulés par de telles impulsions. D'un point de vue technique, ceci correspond également à une mise en forme élémentaire des plus faciles à réaliser. La propagation des impulsions à dérive de fréquence en milieu dense pour le cas résonant a été étudiée dans les années 80 par Grischkowsky *et al.* [23, 24]. Ces études ont montré que la distorsion conduit à l'apparition de structures temporelles plus courtes que la durée des impulsions et dont l'importance peut être significative même quand le champ rayonné est faible. Ces effets de mise en forme (*reshaping*) ont été expliqués comme résultant de l'hétérodynage autoinduit qui apparaît quand le champ rayonné de fréquence et d'amplitude constantes interfère avec le champ incident qui lui a donné naissance. Ces modulations d'intensité apparaissent dans un cadre plus général lorsqu'un système résonant est excité par une impulsion à dérive de fréquence [46, 47].

Dans ce chapitre, nous établirons dans un premier temps l'équation de propagation linéarisée du champ électrique avec la polarisation atomique comme terme source. Nous calculerons ensuite cette polarisation à partir du formalisme de la réponse impulsionnelle appliqué à la matrice densité du système atomique. Dans un second temps, à partir de ces résultats, nous étudierons du point de vue théorique et expérimental quelques exemples simples qui illustrent les phénomènes de propagation d'impulsions ultracourtes. Nous présenterons le théorème de McCall&Hahn, dont nous tirerons quelques propriétés pour la propagation d'impulsions limitées par transformée de Fourier en champ fort. Nous verrons ensuite comme cas particulier du théorème, l'évolution des impulsions en champ faible. Nous mettrons en parallèle l'étude du phénomène du point de vue temporel et spectral. Enfin, nous verrons le cas de la propagation d'impulsions à dérive de fréquence en champ faible, qui n'est pas décrit par le théorème de McCall&Hahn, et dont nous analyserons les résultats expérimentaux.

## II.1 Equations de propagation

### II.1.1 Equation sur le champ électrique

Nous prenons comme point de départ, l'équation de propagation dans la direction  $z$  du champ électrique  $\vec{E} = E_x \vec{e}_x$  polarisé selon  $x$ , dans un milieu sans charge libre ni courant ( $\rho = 0$  et  $\vec{j} = 0$ ) :

$$\square E_x \equiv \triangle E_x - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_x}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_x}{\partial t^2} \quad (\text{II.1})$$

$\vec{P} = P_x \vec{e}_x$  est la polarisation <sup>a</sup> qui résulte de la réponse du milieu à l'excitation électromagnétique et  $\mu_0$  est la perméabilité magnétique du vide.

Lorsqu'on considère des faisceaux gaussiens peu convergents/divergents, c'est-à-dire peu focalisés, le gradient transverse reste faible devant la variation longitudinale du champ électrique :

$$\left| \frac{\partial E_x}{\partial x} \right|, \left| \frac{\partial E_x}{\partial y} \right| \ll \left| \frac{\partial E_x}{\partial z} \right| \quad (\text{II.2})$$

et il en est de même pour les dérivées secondes :

$$\left| \frac{\partial^2 E_x}{\partial x^2} \right|, \left| \frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} \right| \ll \left| \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} \right| \quad (\text{II.3})$$

Sous ces hypothèses, l'équation II.1 se ramène à :

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_x}{\partial t^2} = \mu_0 \left\{ \frac{\partial^2 P_x}{\partial t^2} \right\}_{\omega=\omega_L} \quad (\text{II.4})$$

Le champ électrique associé à l'impulsion laser peut s'écrire à partir des notations complexes sous la forme  $E_x(z, t) = (A(z, t)e^{-i(\omega_L t - k_L z)} + c.c.)/2$  où  $A(z, t)$  est l'enveloppe du champ. Si on suppose que les variations en  $z$  et  $t$  de l'enveloppe sont lentes par rapport à celles de l'exponentielle complexe (SVEA Slowly Varying Envelope Approximation), on peut alors négliger les termes du second ordre par rapport au premier ordre, soit :

$$\left| \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} \right| \ll \left| \omega_L \frac{\partial A}{\partial t} \right| \quad (\text{II.5a})$$

$$\text{et } \left| \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} \right| \ll \left| k_L \frac{\partial A}{\partial z} \right| \quad (\text{II.5b})$$

ce qui signifie que la fréquence centrale du laser est grande devant sa largeur spectrale, et d'autre part que le gain ou les pertes sont faibles. On décompose de la même manière la polarisation  $P_x(z, t) = (\mathcal{P}(z, t)e^{-i(\omega_L t - k_L z)} + c.c.)/2$ , soumise, elle aussi, aux hypothèses de la SVEA qui conduit de la même manière à négliger les termes  $\frac{\partial^2 \mathcal{P}}{\partial t^2}$  et  $\frac{\partial \mathcal{P}}{\partial t}$  devant l'amplitude de la polarisation  $\mathcal{P}$ . De plus on utilise la relation de dispersion du vide  $k_L^2 - \omega_L^2/c^2 = 0$  qui apparaît en facteur de  $A(z, t)$ . En utilisant l'ensemble des propriétés énoncées précédemment, on aboutit à l'équation de propagation de  $A(z, t)$  :

$$\frac{\partial A}{\partial z}(z, t) + \frac{1}{c} \frac{\partial A}{\partial t}(z, t) = i \frac{\omega_L c \mu_0}{2} \mathcal{P}(z, t) \quad (\text{II.6})$$

La dérivation  $\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t}$  dans l'équation II.6 suggère de se placer dans le référentiel copropageant pour étudier l'évolution de l'enveloppe  $A(z, t)$ . Effectuons le changement de variables défini par :

$$\begin{cases} Z &= z/L \\ T &= (t - \frac{z}{c})/\tau_0 \end{cases} \implies \begin{cases} \frac{\partial}{\partial z} &= \frac{1}{L} \frac{\partial}{\partial Z} - \frac{1}{c\tau_0} \frac{\partial}{\partial T} \\ \frac{\partial}{\partial t} &= \frac{1}{\tau_0} \frac{\partial}{\partial T} \end{cases} \quad (\text{II.7})$$

---

<sup>a</sup>Le champ  $\vec{E}$  et la polarisation  $\vec{P}$  sont des valeurs moyennes calculées sur des volumes mésoscopiques.

où  $L$  est la longueur du milieu dans lequel se propage l'impulsion de durée  $\tau_0$ . L'équation de propagation se simplifie et s'écrit finalement en introduisant  $\kappa = \omega_L c \mu_0 L / 2$  :

$$\frac{\partial}{\partial Z} A(Z, T) = i\kappa \mathcal{P}(Z, T) \quad (\text{II.8})$$

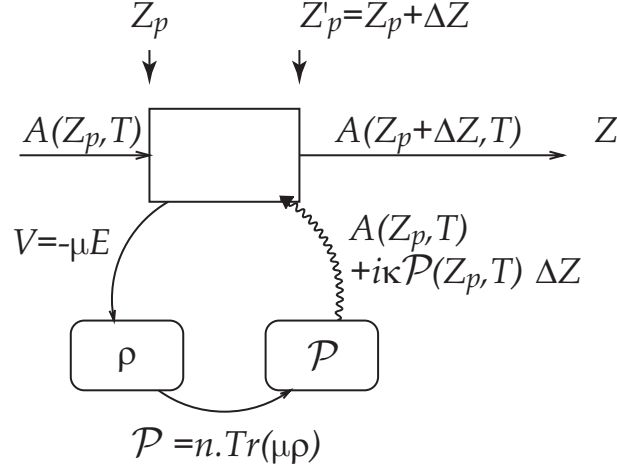


FIG. II.1 – Principe et couplage des équations de propagation

L'équation II.8 doit être interprétée de la manière suivante : on considère une tranche d'épaisseur infinitésimale comprise entre  $Z_p$  et  $Z'_p = Z_p + \Delta Z$ , excitée par le champ  $A(Z_p, T)$ . Après propagation, le champ en  $Z_p + \Delta Z$  à un instant  $T_q$  a pour expression :

$$A(Z_p + \Delta Z, T_q) = A(Z_p, T_q) + i\kappa \mathcal{P}(Z_p, T_q) \cdot \Delta Z \quad (\text{II.9})$$

Pour propager le champ de  $Z_p$  vers  $Z'_p$ , on calcule la polarisation  $\mathcal{P}(Z_p, T_q)$  pour tous les temps  $T_q$ , et le nouveau champ est simplement donné par l'expression II.9. Les différentes étapes du processus sont formellement décrites par le diagramme II.1.

Il faut donc évaluer le terme source, c'est-à-dire calculer la polarisation induite. Cette polarisation est donnée par la valeur moyenne quantique du dipôle  $\hat{\mu}$  (au sens des opérateurs) restreinte aux états dont les transitions sont susceptibles d'émettre à la fréquence du champ excitateur <sup>b</sup>. La valeur moyenne quantique de la polarisation  $\mathcal{P}$  est donnée par :

$$\mathcal{P}(Z, T) = n \langle \hat{\mu} \rangle = n \text{Tr}(\hat{\mu} \hat{\rho})|_{\omega=\omega_L} \quad (\text{II.10})$$

où  $n$  est la densité volumique d'atomes et  $\hat{\rho}$  l'opérateur densité du système évoluant sous l'action de l'hamiltonien d'interaction dipolaire électrique  $V = -\hat{\mu}E$ . Dans un milieu homogène, toutes les propriétés de la polarisation ne dépendent que de l'opérateur  $\hat{\rho}$  dont les caractéristiques seront étudiées dans la section suivante.

Lorsque l'impulsion de durée  $\tau_0$  excite une transition atomique caractérisée par son moment de transition  $\mu$ , on peut introduire par commodité la pulsation de Rabi  $\Omega(T) =$

<sup>b</sup> Avec la notation complexe, la restriction à la pulsation  $\omega_L$  porte également sur le signe :  $\omega_L > 0$  (resp.  $\omega_L < 0$ ) correspond à une porteuse de la forme  $e^{-i\omega_L t}$  (resp.  $e^{i\omega_L t}$ ).

$\mu A(T)/\hbar$  associée au champ électrique  $A(T)$ . L'équation de propagation II.8 peut s'écrire en terme de pulsation de Rabi, on a alors :

$$\boxed{\frac{\partial}{\partial Z}\Omega(Z, T) = i\frac{\omega_L c \mu_0 \mu L}{2\hbar}\mathcal{P}(Z, T)} \quad (\text{II.11})$$

## II.1.2 Equation sur le système quantique - Expression de la polarisation

### II.1.2.1 Expression générale

Pour des raisons de commodité, nous allons travailler dans un système à deux niveaux. L'évolution du système quantique, dont le centre de masse se déplace à la vitesse  $\vec{v}$  dans le référentiel du laboratoire, est décrite par l'équation de Schrödinger sur la fonction d'onde du système donnée par :  $|\psi\rangle(\vec{v}; Z, T) = a(\vec{v}; Z, T)|a\rangle + b(\vec{v}; Z, T)e^{-i\omega_L\tau_0 T}|b\rangle$  où  $|a\rangle$  et  $|b\rangle$  sont les états propres du système. L'équation de Schrödinger s'écrit :

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial T}|\psi\rangle = H\tau_0|\psi\rangle \quad (\text{II.12})$$

où  $H = H_0 + V$  est le Hamiltonien total du système.  $H_0 = \hbar\omega_{ba}|b\rangle\langle b|$  est le Hamiltonien du système à deux niveaux non perturbé dont les états  $|a\rangle$  et  $|b\rangle$  sont séparés en énergie de  $\hbar\omega_{ba}$ . Le couplage est réalisé par  $V(T) = -\hat{\mu}E(T)$  dans la cadre de l'interaction dipolaire électrique. En utilisant l'approximation de l'onde tournante, l'évolution des amplitudes  $a(Z, T)$  et  $b(Z, T)$  s'écrit alors :

$$i\frac{\partial}{\partial T}\begin{pmatrix} a(\vec{v}; Z, T) \\ b(\vec{v}; Z, T) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -\Omega^*(Z, T)\tau_0/2 \\ -\Omega(Z, T)\tau_0/2 & (\Delta - k_L v_z)\tau_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a(\vec{v}; Z, T) \\ b(\vec{v}; Z, T) \end{pmatrix} \quad (\text{II.13})$$

où  $\Delta = \omega_{ba} - \omega_L$  est le désaccord en fréquence du laser par rapport à la transition atomique. Du fait de l'agitation thermique, nous avons tenu compte du fait que tous les atomes ne voient pas le laser avec la même fréquence apparente à cause de l'effet Doppler, d'où le terme  $k_L v_z$  où  $k_L$  est le vecteur d'onde du laser et  $v_z$  la vitesse du centre de masse des atomes dans le référentiel du laboratoire. On doit alors considérer l'évolution de la fonction d'onde  $|\psi(\vec{v})\rangle$  pour chaque classe de vitesse  $\vec{v}$ . Bien que les descriptions en terme de fonction d'onde ou de matrice densité soient strictement équivalentes dans le cas présent (pas de perte ni de relaxation), nous allons construire la matrice densité pour une classe de vitesse, afin de calculer ensuite de manière plus élégante la matrice densité totale en tenant compte de la distribution statistique.

Pour un système à deux niveaux sans relaxations et sans pertes, la matrice densité pour une classe de vitesse  $\hat{\rho}(\vec{v}) = |\psi(\vec{v})\rangle\langle\psi(\vec{v})|$  est donnée par :

$$\begin{aligned} \hat{\rho}(\vec{v}) &= \begin{pmatrix} \rho_{aa}(\vec{v}) & \rho_{ab}(\vec{v}) \\ \rho_{ba}(\vec{v}) & \rho_{bb}(\vec{v}) \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} a(\vec{v}; Z, T)a^*(\vec{v}; Z, T) & a(\vec{v}; Z, T)b^*(\vec{v}; Z, T)e^{i\omega_L\tau_0 T} \\ a^*(\vec{v}; Z, T)b(\vec{v}; Z, T)e^{-i\omega_L\tau_0 T} & b(\vec{v}; Z, T)b^*(\vec{v}; Z, T) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{II.14})$$

La matrice densité totale  $\hat{\rho} = \int \hat{\rho}(\vec{v})g(\vec{v})d^3\vec{v}$  est la somme des matrices densité  $\hat{\rho}(\vec{v})$  de chaque classe de vitesse  $\vec{v}$  pondérée par la distribution de Maxwell-Boltzmann :

$$g(\vec{v}) = \left( \frac{m}{2\pi k_B T_K} \right)^{3/2} e^{-\frac{mv^2}{2k_B T_K}}$$

pour une vapeur atomique portée à la température  $T_K$  et constituée d'atomes de masse  $m$  et  $k_B$  est la constante de Boltzmann. Finalement si on pose  $a^*b = \sigma_{ba} = \rho_{ba}e^{i\omega_L\tau_0 T}$  la polarisation s'écrit alors :

$$\mathcal{P}(Z, T) = n\mu\sigma_{ba}(Z, T) = n\mu \int a^*(\vec{v}; Z, T)b(\vec{v}; Z, T)g(\vec{v})d^3\vec{v} \quad (\text{II.15})$$

### II.1.2.2 Largeur Doppler négligeable

Comme pour des impulsions ultracourtes la largeur Doppler  $\Delta_D$ , associée à la distribution de vitesse, est très petite devant la largeur spectrale  $\Delta\omega$  des impulsions excitatrices ( $\Delta_D \sim 1$  GHz et  $\Delta\omega \sim 30$  THz), on peut négliger l'effet du décalage Doppler dans l'évolution de  $a(\vec{v}; Z, T)$  et  $b(\vec{v}; Z, T)$ . On peut alors écrire :

$$\mathcal{P}(Z, T) \simeq n\mu a^*(0; Z, T)b(0; Z, T) \quad (\text{II.16})$$

Si dans l'expression précédente, on omet le zéro de la classe de vitesse nulle, et que l'on utilise le changement de variable II.7, les phénomènes de propagation sont alors décrits par le système d'équations suivant :

$$\tau_0 \frac{\partial \Omega}{\partial Z}(Z, T) = ie_{\text{disp}} a^*(Z, T)b(Z, T) \quad (\text{II.17a})$$

$$i \frac{\partial a}{\partial T}(Z, T) = -\tau_0 \Omega^*(Z, T)b(Z, T)/2 \quad (\text{II.17b})$$

$$i \frac{\partial b}{\partial T}(Z, T) = -\tau_0 \Omega(Z, T)a(Z, T)/2 + \Delta\tau_0 b(Z, T) \quad (\text{II.17c})$$

avec la quantité

$$e_{\text{disp}} = \omega_L c \mu_0 n \mu_{12}^2 L \tau_0 / 2\hbar \quad (\text{II.18})$$

On peut relier cette quantité au coefficient d'absorption à résonance

$$\alpha_0 = \frac{\omega_L c \mu_0 n \mu_{12}^2}{2\hbar \Delta_D} \quad (\text{II.19})$$

en introduisant artificiellement la largeur Doppler

$$\Delta_D = k_L \sqrt{2k_B T_K / \pi m} \quad (\text{II.20})$$

A ce stade, nous pouvons nous contenter de la description des phénomènes de propagation sous la forme du système d'équations II.17 que nous utiliserons effectivement dans la suite de cet exposé. Nous allons cependant reprendre l'étude précédente en tenant compte plus précisément de la largeur Doppler. Ceci nous permettra d'établir ici que l'évolution des quantités atomiques ne dépend effectivement pas de l'effet Doppler et dans la partie II.2.1.2 que l'absorption est bien négligeable. Nous allons également introduire le formalisme de la réponse impulsionnelle.



### II.1.2.3 Prise en compte de la largeur Doppler

Ecrivons dans un premier temps l'équation d'évolution de l'inversion de population  $\Delta N(\vec{v}; Z, T) = |b(\vec{v}; Z, T)|^2 - |a(\vec{v}; Z, T)|^2$ . Nous obtenons à partir de II.13 :

$$\frac{\partial \Delta N}{\partial T}(\vec{v}; Z, T) = -i\tau_0 (\Omega^*(Z, T)\sigma_{ba}(\vec{v}; Z, T) - \Omega(Z, T)\sigma_{ba}^*(\vec{v}; Z, T)) \quad (\text{II.21})$$

On voit alors que l'évolution de  $\Delta N(\vec{v}; Z, T)$  ne dépend pas explicitement de la classe de vitesse  $\vec{v}$ . Si nous effectuons l'intégration sur les classes de vitesse, nous trouvons :

$$\frac{\partial \Delta N}{\partial T}(Z, T) = -i\tau_0 (\Omega^*(Z, T)\sigma_{ba}(Z, T) - \Omega(Z, T)\sigma_{ba}^*(Z, T)) \quad (\text{II.22})$$

avec

$$\Delta N(Z, T) = \int \Delta N(\vec{v}; Z, T)g(\vec{v})d^3\vec{v} \quad \text{et} \quad \sigma_{ba}(Z, T) = \int \sigma_{ba}(\vec{v}; Z, T)g(\vec{v})d^3\vec{v}$$

En l'absence des phénomènes de relaxation, l'inversion de population  $\Delta N(\vec{v}; Z, T)$  (comme  $\Delta N(Z, T)$ ) n'évolue que sous l'action du champ exciteur  $\Omega(Z, T)$ . Ecrivons également à partir de II.13 l'équation d'évolution de la cohérence atomique  $\sigma_{ba}(\vec{v}; Z, T)$  :

$$\frac{\partial \sigma_{ba}}{\partial T}(\vec{v}; Z, T) = -i\frac{\tau_0}{2}\Omega(Z, T)\Delta N(\vec{v}; Z, T) - i\tau_0(\Delta - k_L v_z)\sigma_{ba}(\vec{v}; Z, T) \quad (\text{II.23})$$

La transformée de Fourier de l'équation précédente donne :

$$-i\omega\tau_0\tilde{\sigma}_{ba}(\vec{v}; Z, \omega) = -i(\tau_0/2)\mathcal{F}[\Omega(Z, T)\Delta N(\vec{v}; Z, T)] - i\tau_0(\Delta - k_L v_z)\tilde{\sigma}_{ba}(\vec{v}; Z, \omega) \quad (\text{II.24})$$

avec  $\omega = \omega_{\text{vrai}} - \omega_L$ . On obtient sans difficulté :

$$\tilde{\sigma}_{ba}(\vec{v}; Z, \omega) = \mathcal{F}\left[\frac{1}{2}\Omega(Z, T)\Delta N(\vec{v}; Z, T)\right]\frac{1}{\omega - \Delta + k_L v_z} \quad (\text{II.25})$$

En effectuant l'intégrale sur les classes de vitesse,  $\Delta N(\vec{v}; Z, T)$  sort de l'intégrale, puisque à l'ordre le plus bas, elle ne dépend pas de  $v_z$ . On peut alors écrire  $\Delta N(\vec{v}; Z, T) \simeq N(0; Z, T)$  dont l'évolution est la même que celle de  $\Delta N(Z, T)$ . Il vient alors que :

$$\tilde{\sigma}_{ba}(Z, \omega) \simeq \mathcal{F}\left[\frac{1}{2}\Omega(Z, T)\Delta N(Z, T)\right]\int_{v_z} \frac{g(v_z)dv_z}{\omega - \Delta + k_L v_z} \quad (\text{II.26})$$

avec

$$g(v_z) = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_K}} e^{-\frac{mv_z^2}{2k_B T_K}}$$

la distribution de Maxwell-Boltzmann sur la composant  $v_z$  qui seule intervient dans l'effet Doppler. Si on pose

$$\tilde{G}_{ba}(\omega) = -\int_{v_z} \frac{g(v_z)dv_z}{\omega - \Delta + k_L v_z} \quad (\text{II.27})$$

et que l'on prend la transformée de Fourier inverse de l'équation II.26, on peut alors écrire que :

$$\sigma_{ba}(Z, T) = -\left[\frac{1}{2}\Omega(Z, T)\Delta N(Z, T)\right] \otimes G_{ba}(T) \quad (\text{II.28})$$

Dans la relation précédente  $[\Omega(Z, T)\Delta N(Z, T)] \otimes G_{ba}(T)$  désigne le produit de convolution entre  $[\Omega(Z, T)\Delta N(Z, T)]$  et  $G_{ba}(T)$ . La fonction  $G_{ba}(T) = \mathcal{F}^{-1}[\tilde{G}_{ba}(\omega)]$  est la réponse impulsionnelle du système. D'après les relations II.10, II.15 et II.28, la polarisation induite est alors égale à :

$$\mathcal{P}(Z, T) = -\frac{n\mu}{2}[\Omega(Z, T)\Delta N(Z, T)] \otimes G_{ba}(T) \quad (\text{II.29})$$

La formulation précédente présente l'avantage de faire apparaître la réponse impulsionnelle  $G_{ba}(T)$  du système, c'est-à-dire de faire apparaître naturellement la fonction caractéristique de la propagation en champ faible dans une formulation plus générale qui inclut également les excitations en champ fort.

## II.2 Etude expérimentale et théorique de cas simples

Nous disposons maintenant d'un ensemble d'équations (II.17a-c), qui permettent de décrire complètement aussi bien l'évolution des grandeurs atomiques que le comportement spatio-temporel du champ exciteur au cours de la propagation dans le milieu atomique :

$$\begin{aligned} \tau_0 \frac{\partial \Omega}{\partial Z}(Z, T) &= i e_{\text{disp}} a^*(Z, T) b(Z, T) = -i \frac{e_{\text{disp}}}{2} [\Omega(Z, T)\Delta N(Z, T)] \otimes G_{ba}(T) \\ i \frac{\partial a}{\partial T}(Z, T) &= -\tau_0 \Omega^*(Z, T) b(Z, T) / 2 \\ i \frac{\partial b}{\partial T}(Z, T) &= -\tau_0 \Omega(Z, T) a(Z, T) / 2 + \Delta \tau_0 b(Z, T) \end{aligned}$$

Les phénomènes de propagation sont le résultat de l'évolution conjointe du champ électrique et des propriétés du milieu à travers les quantités atomiques. S'agissant d'un problème relativement complexe, il n'existe pas de solution générale, et l'étude nécessite parfois des outils de résolution numérique. Il existe également plusieurs formalismes tels que les méthodes inverses [13] ou les exposants de matrices [48], qui permettent d'avoir des classes de solutions pour des situations particulières.

Bien que la propagation puisse revêtir des aspects relativement complexes, il est cependant possible d'établir des lois générales (théorème de l'aire, conservation de l'énergie) à partir de ces équations. Nous allons étudier des cas particuliers simples qui peuvent être dérivés exactement de manière analytique, et dont le comportement qualitatif peut être facilement compris et analysé à partir des données expérimentales et des simulations numériques.

NB : Afin de ne pas alourdir les équations, nous ne noterons les dépendances en  $Z$  et  $T$  que si cela est nécessaire pour la discussion et/ou la compréhension des phénomènes.

## II.2.1 Cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier résonante

### II.2.1.1 Situation de champ fort - Théorème de l'aire

Nous nous restreignons ici à la présentation de l'interaction entre une impulsion intense limitée par transformée de Fourier résonante ( $\Delta = 0$ ) et un système à deux niveaux sans pertes ni relaxations. Le cas des impulsions non résonantes  $\Delta \neq 0$  sera traité dans le chapitre IV. Cette situation correspond par exemple à l'excitation d'une transition atomique par une impulsion laser dont l'intensité est telle que l'absorption multiphotonique et l'ionisation peuvent être négligées (voir annexe A pour le cas du rubidium). Pour examiner la propagation en champ fort, nous allons utiliser le théorème de McCall&Hahn [5, 7, 8] dont la démonstration, à partir des équations de Bloch, est reportée en annexe B.

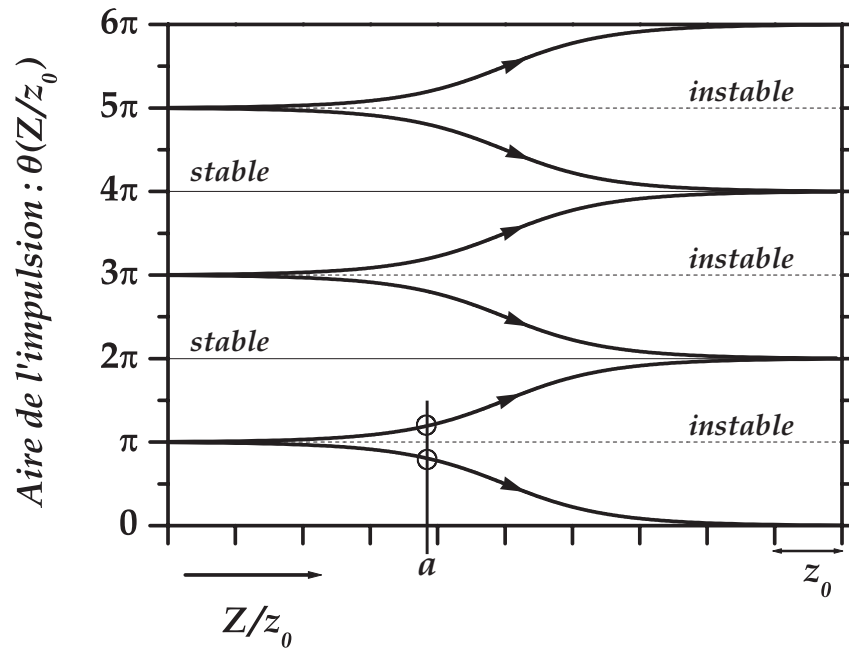


FIG. II.2 – Représentation graphique des solutions du théorème de McCall&Hahn (d'après [5,7,8, 49]) : L'origine des distances n'est pas représentée car elle dépend de l'aire initiale de l'impulsion. Seul le sens de propagation est indiqué par la flèche. Les multiples pairs de  $\pi$  sont représentés en traits pleins et correspondent à des solutions stables. Les multiples impairs de  $\pi$  sont représentés en pointillés et correspondent à des solutions instables. Les deux cercles sont associés à des impulsions dont l'aire initiale est proche de  $\pi$ . Si cette aire est inférieure à  $\pi$  (e.g.  $0,9\pi$ ), l'impulsion va évoluer vers une impulsion d'aire nulle au cours de la propagation. Au contraire, si l'aire initiale est légèrement supérieure à  $\pi$  (e.g.  $1,1\pi$ ), elle évoluera vers une aire de  $2\pi$

L'aire algébrique de l'impulsion qui s'identifie à l'angle de Rabi  $\theta(Z)$  de l'impulsion s'écrit, avec le changement de variable que nous avons choisi :

$$\theta(Z) = \tau_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega(Z, T') dT' \quad (\text{II.31})$$

Son évolution au cours de la propagation s'obtient en intégrant l'équation de propagation. Après intégration, on aboutit au théorème (quantique) de l'aire ou théorème de McCall&Hahn, qui montre que l'aire algébrique de l'impulsion obéit au cours de la propagation à l'équation différentielle suivante :

$$\boxed{\frac{d\theta}{dZ} = -\frac{1}{z_0} \sin \theta} \quad (\text{II.32})$$

avec  $z_0^{-1} = e_{\text{disp}}$ .

Les solutions <sup>⊆</sup> de cette équation sont représentées sur la figure II.2. L'aire au cours de la propagation s'exprime alors selon :

$$\tan \frac{\theta(Z)}{2} = e^{-(Z-a)/z_0} \tan \frac{\theta(a)}{2} \quad (\text{II.35})$$

où  $\theta(a)$  est l'aire à l'entrée du milieu. L'origine  $a$  des distances est prise au point  $Z$  où la courbe représentative de l'aire  $\theta(Z)$  est égale à l'aire de l'impulsion incidente. Les impulsions dont l'aire est un multiple de  $\pi$  sont des pôles de l'équation. Considérons les pôles qui sont des multiples impairs de  $\pi$ . L'aire de telles impulsions peut s'écrire  $\theta = \pi + q2\pi$ . Si on ajoute à l'équation II.32 une fluctuation  $\varepsilon$ , on a  $\sin(\theta + \varepsilon) = -\sin \varepsilon \approx -\varepsilon$ . Ceci implique que

$$\frac{d\varepsilon}{dZ} = \frac{\varepsilon}{z_0}$$

et la fluctuation est amplifiée quel que soit son signe. Les multiples impairs de  $\pi$  sont donc des solutions instables. On peut montrer de la même manière que les multiples pairs de  $\pi$  sont des solutions stables du théorème de l'aire. Dans notre cas, la conséquence la plus intéressante est une variation d'aire  $\Delta\theta = \theta(Z) - \theta_0$  des impulsions bornée :

$$\boxed{0 \leq |\Delta\theta| \leq \pi} \quad (\text{II.36})$$

Nous pouvons en effet voir graphiquement sur la figure II.2, que la variation d'aire est au plus de  $\pm\pi$  (e.g. une impulsion d'aire  $\pi + \varepsilon$  tend vers une aire de  $2\pi$  tandis qu'une impulsion d'aire  $\pi - \varepsilon$  tend vers une aire de 0). Ainsi pour des impulsions de grande aire algébrique, on obtient que la variation relative d'aire algébrique  $|\Delta\theta|/\theta_0$  tend vers zéro quand l'aire initiale des impulsions  $\theta_0$  croît. Ceci signifie qu'au cours de la propagation, l'aire des impulsions intenses est pratiquement conservée, tout comme leur énergie par ailleurs.

---

<sup>⊆</sup> Les solutions sont immédiates si on utilise le fait que

$$-\frac{1}{z_0} dZ = \frac{d\theta}{\sin \theta} = \frac{d\theta}{2 \sin \frac{\theta}{2} \cos \frac{\theta}{2}} = \frac{d\theta}{2} \left( \frac{1}{\tan \frac{\theta}{2}} \times \frac{1}{\cos^2 \frac{\theta}{2}} \right) = \frac{1}{\tan \frac{\theta}{2}} \cdot d \left( \tan \frac{\theta}{2} \right) = d \left( \ln \tan \frac{\theta}{2} \right) \quad (\text{II.33})$$

Finalement, on trouve que

$$\ln \tan \theta/2 = -(Z - a)/z_0 \quad (\text{II.34})$$

où  $a$  est une constante d'intégration qui correspond à la position de la face d'entrée du milieu.

Cependant, il n'en est pas nécessairement de même pour la forme temporelle des impulsions : si on s'intéresse par exemple à l'évolution des impulsions dont l'aire  $\theta = 2n\pi$  est un multiple entier de  $2\pi$ , G.L.Lamb, Jr. [12] a montré le phénomène de scission en  $n$  impulsions d'aire  $2\pi$ , dont chacune tend vers une sécante hyperbolique. La forme de sécante hyperbolique correspond en fait au soliton d'aire  $2\pi$ , première solution stable du théorème de McCall&Hahn. On peut effectivement montrer que l'impulsion se déforme pour adopter une forme temporelle invariante par propagation, le soliton  $2\pi$  associé au phénomène de transparence autoinduite (SIT *Self Induced Transparency*) [7, 8]. Il s'agit là d'un exemple très révélateur des modifications que subit une impulsion au cours de la propagation. On peut citer également le phénomène d'amplification par rétrécissement (ou *peak amplification*), qui apparaît dans un milieu passif absorbant (même très faiblement). Cet effet peut être illustré en considérant une impulsion d'aire initiale  $3\pi$  (instable). Son énergie  $W_0 = W_{3\pi}$  est conservée, en revanche la conservation de l'aire n'est plus satisfaite et le théorème de McCall&Hahn implique que son aire doit tendre vers  $2\pi$  (stable). Soit  $A_{2\pi}$  et  $A_{3\pi}$  les amplitudes crêtes et  $\tau_{2\pi}$  et  $\tau_{3\pi}$  les durées caractéristiques de l'impulsion associées respectivement à chaque cas, les aires des impulsions sont données par  $\gamma A_{2\pi} \tau_{2\pi} = 2\pi$  et  $\gamma A_{3\pi} \tau_{3\pi} = 3\pi$  où  $\gamma$  est une constante de normalisation. L'énergie est donnée dans chacun des cas par :

$$W_{2\pi} \propto A_{2\pi}^2 \tau_{2\pi} \quad \text{et} \quad W_{3\pi} \propto A_{3\pi}^2 \tau_{3\pi}$$

Comme l'énergie est conservée  $W_{2\pi} = W_{3\pi}$ , on obtient facilement la relation entre les durées de l'impulsion  $\tau_{2\pi}$  avant et  $\tau_{3\pi}$  après propagation  $\tau_{2\pi} = 4\tau_{3\pi}/9$ . L'impulsion subit donc une compression assez importante de sa durée, qui se traduit par une amplification de l'amplitude crête  $A_{2\pi} = 3A_{3\pi}/2$ .

L'ensemble de ces phénomènes [12, 50–52] peut être particulièrement dommageable lorsqu'on s'intéresse à des schémas d'excitation qui dépendent par exemple du recouvrement temporel entre une impulsion forte et une autre impulsion faible. Cependant, puisqu'ils correspondent à des cas limites ( $Z \rightarrow +\infty$  ou  $e_{\text{disp}} \gg 1$ ), leurs effets restent en pratique limités [53]. En effet si on considère l'enveloppe normalisée  $f(Z, T)$  de l'impulsion définie à partir de l'équation II.31 par :

$$f(Z, T) = \tau_0 \Omega(Z, T) / \theta(Z) \quad (\text{II.37})$$

l'équation de propagation de  $f$  s'écrit dans le cas général

$$\frac{\partial f}{\partial Z}(Z, T) = i \frac{e_{\text{disp}}}{\theta(Z)} \sigma_{ba}(Z, T) \quad (\text{II.38})$$

En champ fort,  $\theta(Z)$  a des valeurs importantes tandis que  $|\sigma_{ba}| < 1/2$ . Ainsi  $|\partial f / \partial Z| \sim e_{\text{disp}} / \theta(Z)$  et les effets de propagation ne jouent un rôle prépondérant que pour des valeurs importantes de  $e_{\text{disp}}$ , c'est-à-dire pour des milieux de grande longueur avec une densité importante  $e_{\text{disp}} \gg \theta(Z)$ . La quantité  $e_{\text{disp}}$  caractérise donc l'importance des effets de propagation.

Pour illustrer ceci, reprenons l'exemple du phénomène de scission. Si on regarde les profils temporels de la figure II.3, obtenus à différentes épaisseurs optiques  $\alpha_0 L$  pour une impulsion de 10 nm (FWHM) résonante sur la transition  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$  du rubidium

centrée à 794,76 nm et d'aire  $10\pi$ , on constate que l'impulsion n'apparaît affectée de manière sensible que pour  $e_{\text{disp}} \approx 0,5 - 1$  (épaisseurs optiques  $\alpha_0 L \approx 10000 - 20000$ ). De plus le phénomène de scission ou "breakup" n'est effectif que pour des valeurs extrêmement grandes de l'épaisseur optique  $e_{\text{disp}} = 5$  ( $\alpha_0 L = 10^5$ ), où le premier  $2\pi$ -soliton matérialisé par une flèche, apparaît nettement détaché de l'impulsion déformée.

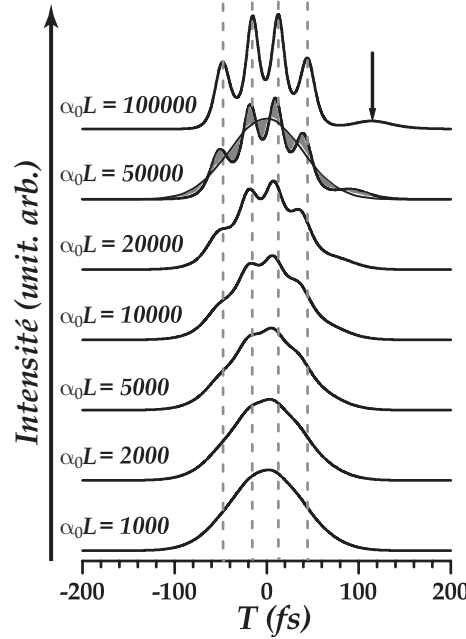


FIG. II.3 – Apparition progressive du phénomène de scission en fonction de l'épaisseur pour une impulsion d'aire  $10\pi$  : Lorsque la distance de propagation croît, l'impulsion présente des modulations de plus en plus prononcées. Le cas limite correspond à la scission de l'impulsion en cinq solitons. La flèche signale le premier soliton  $2\pi$  distinctement séparé de l'impulsion. Aux valeurs typiques de 5000 à 10000 de l'épaisseur optique auxquelles nous travaillons, la distortion de l'impulsion reste faible.

Nous allons introduire une quantité permettant de quantifier les déformations temporelles de l'impulsion, autrement que par des grandeurs macroscopiques caractérisant uniquement le milieu. Considérons la quantité suivante

$$D_I = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} |I(Z=1, T) - I(Z=0, T)| dT}{\int_{-\infty}^{+\infty} I(Z=0, T) dT} \quad (\text{II.39})$$

où  $I(Z, T) = |f(Z, T)|^2$  est l'intensité temporelle de l'impulsion. Le numérateur représente l'aire grisée sur la figure II.3 pour le cas  $\alpha_0 L = 50000$ . La quantité  $D_I$  peut effectivement être vue comme caractéristique de la déformation du profil temporel d'intensité ( $D_I$  est calculable par exemple à partir des  $I(Z, T)$  mesurées expérimentalement par corrélation d'intensité). Après propagation sur l'échantillon de longueur  $L$  ( $Z = 1$ ), on peut voir sur la figure II.4 que cette distortion croît en première approximation linéairement avec l'épaisseur optique  $\alpha_0 L$  et qu'elle est d'autant moins importante que l'impulsion est intense.

Ainsi quand on multiplie l'angle de Rabi par deux, la distorsion relative à une épaisseur optique donnée est divisée par deux. On voit sur la figure II.5 que quand on augmente la durée des impulsions pour une épaisseur optique et un angle de Rabi fixés, la distorsion relative augmente rapidement.

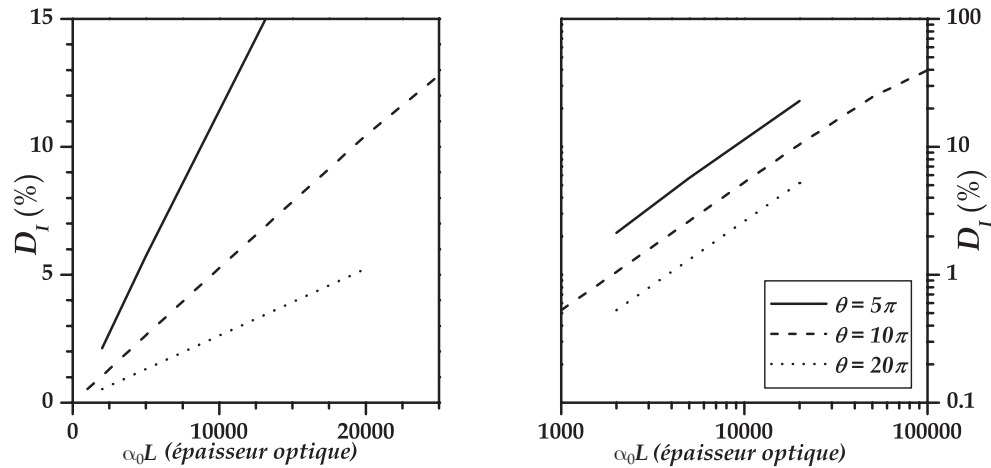
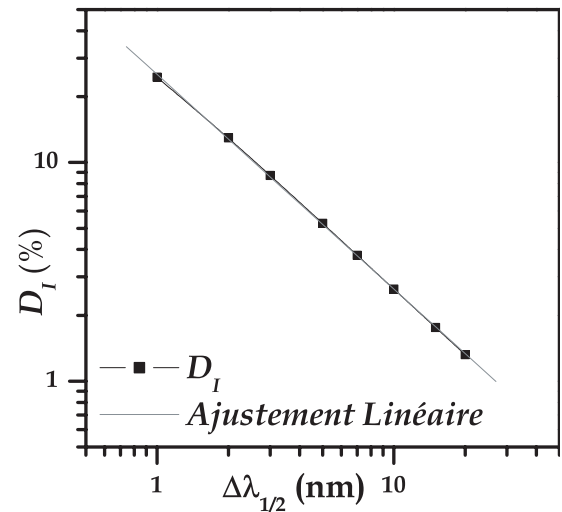


FIG. II.4 – Evolution de la distorsion relative  $D_I$  (en %) en fonction de l'épaisseur optique  $\alpha_0 L$  : La distorsion relative croît linéairement avec l'épaisseur optique (en première approximation). A épaisseur optique donnée, une impulsion subit une distorsion d'autant plus faible que l'aire de l'impulsion est grande. Une impulsion de  $5\pi$  est 4 fois plus affectée qu'une impulsion de  $20\pi$ . L'écart à la relation linéaire, visible à grande épaisseur optique pour le cas d'une impulsion d'aire  $10\pi$ , coïncide avec l'apparition du premier soliton (figure II.3).

FIG. II.5 – Influence de la durée des impulsions sur la distorsion : La distorsion relative d'une impulsion qui se propage dans un milieu d'épaisseur optique  $e_{\text{disp}} = 0,25$  ( $\alpha_0 L = 5000$ ) décroît linéairement quand la durée des impulsions diminue. La largeur spectrale des impulsions est d'autant plus grande que les impulsions sont courtes et la fraction d'énergie affectée par la dispersion diminue en conséquence.



### II.2.1.2 Situation de champ faible

On peut prédire qualitativement le comportement d'une impulsion résonante  $\Delta = 0$  et limitée par transformée de Fourier en invoquant deux arguments. D'une part, la première propriété repose sur le bilan d'énergie de l'impulsion : la largeur Doppler est très faible par rapport à la largeur spectrale de l'impulsion incidente, de sorte que seule une fraction très faible ( $\sim 10^{-4}$ ) de l'énergie incidente est absorbée efficacement. Ce processus n'a lieu que sur les premières épaisseurs de l'échantillon, où l'énergie qui coïncide avec la raie d'absorption est absorbée sur quelques unités de  $z_0 \propto \alpha_0^{-1}$ . Au-delà de cette zone, l'impulsion ne dépose plus d'énergie dans le milieu et comme cette fraction d'énergie absorbée est négligeable en regard de l'énergie totale, on peut raisonnablement considérer l'énergie  $W$  de l'impulsion comme conservée au cours de la propagation.

$$W = C^{te} \quad (\text{II.40})$$

D'autre part, la forme linéarisée du théorème de McCall & Hahn [6–8] (équation II.32) montre que l'aire algébrique de l'impulsion  $\theta(Z) = \tau_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega(Z, T') dT'$  obéit en champ faible à l'équation :

$$\frac{d\theta}{dZ} = -\frac{\theta}{z_0} \quad (\text{II.41})$$

ce qui signifie que cette aire doit tendre vers zéro assez rapidement, après quelques longueurs  $z_0$ . On comprend alors facilement que l'enveloppe de l'impulsion adopte un profil oscillant<sup>d</sup> afin de satisfaire simultanément à II.40 et II.41. Afin de préciser le comportement temporel de l'impulsion au cours de la propagation, nous allons calculer la polarisation induite, dont on va déduire la transmittance spectrale et la fonction réponse de l'échantillon.

#### II.2.1.2.1 Fonction réponse

Etablissons dans le cas général  $\Delta = 0$  l'évolution de l'impulsion. Nous pouvons faire le développement de  $\rho_{21}$  en série de perturbation par rapport au champ électrique. A l'ordre zéro  $\rho_{21}^{(0)}$  est nul car il n'est soumis à aucun terme d'évolution, et conserve sa valeur d'équilibre égale à zéro. Le premier ordre fait quant à lui apparaître la différence de population à l'équilibre  $\Delta N^{(0)} = -1$ . La polarisation induite est alors donnée à partir de l'équation II.29 par :

$$\mathcal{P}(Z, T) = n\mu G_{ba}(T) \otimes \Omega(Z, T)/2 \quad (\text{II.42})$$

Portons la relation II.42 dans l'équation de propagation, on obtient :

$$\frac{\partial \Omega(Z, T)}{\partial Z} = i \frac{e_{\text{disp}}}{2\tau_0} G_{ba}(T) \otimes \Omega(Z, T) \quad (\text{II.43})$$

Prenons la transformée de Fourier de la relation précédente :

$$\frac{\partial \tilde{\Omega}(Z, \omega)}{\partial Z} = i \frac{e_{\text{disp}}}{2\tau_0} \tilde{G}_{ba}(\omega) \tilde{\Omega}(Z, \omega) \quad (\text{II.44})$$

---

<sup>d</sup> On peut montrer dans le cas résonant  $\Delta = 0$  que, si l'enveloppe du champ est réelle en entrée, elle est alors également réelle en sortie.



L'intégration de II.44 donne :

$$\tilde{\Omega}(Z = 1, \omega) = \tilde{\Omega}(Z = 0, \omega)T(\omega) \quad (\text{II.45})$$

avec

$$T(\omega) = \exp\left(ie_{\text{disp}}\tilde{G}_{ba}(\omega)/2\tau_0\right)$$

Expliciteons l'expression intégrale (II.27) de  $\tilde{G}_{ba}(\omega)$  :

$$\tilde{G}_{ba}(\omega) = -\sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_K}} \int_{v_z} \frac{e^{-\frac{mv_z^2}{2k_B T_K}} dv_z}{\omega - \Delta + k_L v_z} \quad (\text{II.46})$$

Après calcul ([54] relations 7.1.3 et 7.1.4 p.297), il vient que :

$$\tilde{G}_{ba}(\omega) = \frac{i}{\Delta_D} \left[ e^{-\frac{1}{\pi} \left( \frac{\omega - \Delta}{\Delta_D} \right)^2} + \frac{2i}{\sqrt{\pi}} \mathcal{D} \left( \frac{\omega - \Delta}{\sqrt{\pi} \Delta_D} \right) \right] \quad (\text{II.47})$$

où  $\mathcal{D}(x)$  est la fonction integrale de Dawson [54] définie par

$$\mathcal{D}(x) = e^{-x^2} \int_0^x e^{y^2} dy$$

**NB** : La transformée de Fourier telle qu'on l'utilise est définie par rapport à la fréquence centrale  $\omega_L$  du laser, ainsi  $\omega$  ne désigne pas la fréquence absolue mais l'écart à la fréquence du laser.

Quand on redéfinit  $\omega - \Delta \rightarrow \omega - \omega_{21}$ ,  $\omega$  désigne maintenant la fréquence absolue, et la transmittance spectrale  $T(\omega)$  de l'échantillon est alors égale à

$$T(\omega) = \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2} \left( e^{-\frac{1}{\pi} \left( \frac{\omega - \omega_{21}}{\Delta_D} \right)^2} + \frac{2i}{\sqrt{\pi}} \mathcal{D} \left( \frac{\omega - \omega_{21}}{\sqrt{\pi} \Delta_D} \right) \right)\right) \quad (\text{II.48})$$

On peut réécrire  $T(\omega)$  sous la forme  $T(\omega) = \alpha_1(\omega)e^{i\alpha_2(\omega)}$  avec

$$\alpha_1(\omega) = \exp\left(-\frac{\alpha_0 L}{2} e^{-\frac{1}{\pi} \left( \frac{\omega - \omega_{21}}{\Delta_D} \right)^2}\right) \quad (\text{II.49a})$$

$$\alpha_2(\omega) = -\frac{\alpha_0 L}{\sqrt{\pi}} \mathcal{D} \left( \frac{\omega - \omega_{21}}{\sqrt{\pi} \Delta_D} \right) \quad (\text{II.49b})$$

Le module  $\alpha_1(\omega)$  et l'argument  $\alpha_2(\omega)$  correspondent respectivement à l'absorption et à la dispersion. La transmittance à résonance  $\alpha_1(\omega_{21})$  tend rapidement vers zéro quand l'épaisseur optique  $\alpha_0 L$  augmente et l'énergie à résonance est rapidement atténuée. Cependant la largeur de l'absorption  $\Delta_{abs}$  croît proportionnellement à  $\Delta_{abs} \propto \Delta_D \sqrt{\ln(\alpha_0 L)}$ . Comme la largeur spectrale  $\Delta\omega$  des impulsions est très grande devant  $\Delta_D$ , l'énergie totale absorbée est négligeable par rapport à l'énergie totale de l'impulsion ( $\Delta_{abs}/\Delta\omega \ll 1$ ) et augmente très lentement avec l'épaisseur optique <sup>é</sup>.

<sup>é</sup> On peut alors écrire  $\alpha_1(\omega) \simeq \Theta(\omega - \omega_{21}) + \Theta(\omega_{21} - \omega)$  qui vaut 1 partout sauf en  $\omega = \omega_{21}$  où  $\alpha_1(\omega_{21}) = 0$ .  $\Theta(\omega)$  est la fonction de Heaviside.

Ainsi l'action de  $T(\omega) = e^{i\alpha_2(\omega)}$  se traduit par l'application d'une phase spectrale  $\phi_{disp}(\omega)$ , donnée par la fonction de Dawson. Dès que le désaccord  $\Delta$  est de l'ordre de quelques  $\Delta_D$ , c'est-à-dire en dehors de la résonance, on peut faire l'approximation suivante :

$$\mathcal{D}\left(\frac{\omega - \omega_{21}}{\sqrt{\pi}\Delta_D}\right) \simeq \frac{1}{2\sqrt{\pi}} \frac{\Delta_D}{\omega - \omega_{21}} \quad (\text{II.50})$$

La phase spectrale  $\phi_{disp}(\omega) = \alpha_2(\omega)$  est alors donnée par

$$\boxed{\phi_{disp}(\omega) = -\frac{e_{disp}}{2(\omega - \omega_{21})\tau_0}} \quad (\text{II.51})$$

Nous pouvons alors calculer la fonction réponse  $R(T)$  <sup>‡</sup> donnée par la transformée de Fourier de  $T(\omega)$  :

$$R(T) = \mathcal{P} \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\frac{e_{disp}}{2(\omega - \omega_{21})\tau_0}} e^{-i\omega\tau_0 T} \frac{d\omega}{2\pi} \right] \quad (\text{II.52})$$

où  $\mathcal{P}[\dots]$  désigne la partie principale <sup>§</sup>. En utilisant la relation [55]

$$J_\nu(\gamma) = \frac{(-1)^\nu}{2\pi i} \int_{-\infty}^{(0+)} x^{\nu+1} \exp\left[\frac{\gamma}{2}\left(x - \frac{1}{x}\right)\right] dx \quad (\text{II.53})$$

on montre alors après calcul que :

$$\boxed{R(T) = \tau_0^{-1}\delta(T) - e_{disp}\tau_0^{-1} \frac{J_1(\sqrt{2e_{disp}T})}{\sqrt{2e_{disp}T}} e^{-i\omega_{21}\tau_0 T} \Theta(T)} \quad (\text{II.54})$$

où  $\Theta(T)$  est la fonction de Heaviside et  $J_1(x)$  la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1. On définit le temps caractéristique  $t_p = \tau_0/e_{disp}$ , qui donne l'échelle des variations temporelles de la fonction  $R(T)$  [56].

<sup>‡</sup> Habituellement la fonction réponse  $R(T)$  est réelle et définie avec les champs réels et indépendamment des caractéristiques de l'excitation (fréquence, intensité, ...). Le champ transmis  $E_s(T)$  est donné par  $E_s(T) = \int E_e(T - T')R(T')dT'$  où  $E_e(T)$  est le champ incident. Avec la notation complexe prise ici et dans le cadre de RWA,  $R(T)$  n'est plus réelle et se définit à partir de  $\Omega_s(T)e^{-i\omega_L\tau_0 T}$  de sorte que pour le champ transmis réel, on a :

$$\begin{aligned} \frac{\mu}{\hbar}E_s(T) &= \frac{1}{2}(\Omega_s(T)e^{-i\omega_L\tau_0 T} + c.c.) = \frac{\tau_0}{2} \left( e^{-i\omega_L\tau_0 T} \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega_e(T - T')R(T')e^{-i\omega_L\tau_0(T - T')}dT' + c.c. \right) \\ &= \frac{\tau_0}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega_e(T - T')R(T')e^{i\omega_L\tau_0 T'} dT' + c.c. \end{aligned}$$

Par commodité, nous incluons parfois le terme  $e^{-i\Delta\tau_0 T}$  dans la fonction réponse. Elle n'est alors plus indépendante des propriétés du champ exciteur. Cependant s'agissant d'une factorisation arbitraire, les propriétés physiques sont inchangées.

<sup>§</sup> La partie principale apparaît quand on tient compte de l'absorption à résonance qui annule  $T(\omega)$ , on a alors  $\alpha_1(\omega) = \Theta(\omega + \omega_{21}) + \Theta(\omega_{21} - \omega)$

Le champ  $\Omega(1, T)$  après propagation sur une longueur  $L$  ( $Z = 1$ ) est alors donné par :

$$\begin{aligned}\Omega(1, T) &= \tau_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega(0, T - T') R(T') e^{i\omega_L \tau_0 T'} dT' \\ &= \Omega(0, T) + \Omega_{ray}(T)\end{aligned}\quad (\text{II.55})$$

où  $\Omega(0, T)$  est le champ incident à l'entrée du milieu lié au pic de Dirac de  $R(T)$ .  $\Omega_{ray}(T)$  est le champ rayonné par le système

$$\Omega_{ray}(T) = \tau_0 \int_{-\infty}^{+\infty} R_L(T') \Omega(0, T - T') e^{-i\Delta \tau_0 T'} dT' \quad (\text{II.56})$$

Nous avons introduit

$$R_L(T') = -\tau_0^{-1} e_{\text{disp}} \frac{J_1(\sqrt{2T'} e_{\text{disp}})}{\sqrt{2T'} e_{\text{disp}}} \Theta(T') \quad (\text{II.57})$$

qui est dans la fonction réponse totale  $R(T)$ , la contribution due au milieu résonant et qui donne le champ rayonné  $\Omega_{ray}(T)$ .

Pour un champ incident résonant ( $\Delta = 0$ ) dont la durée caractéristique  $\tau_0$  est très petite devant  $t_p = \tau_0/e_{\text{disp}}$ , la fonction réponse peut être factorisée hors de l'intégrale qui donne le champ rayonné :

$$\begin{aligned}\Omega_{ray}(T) &= \tau_0 R_L(T) \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega(0, T') dT' \\ &= -\theta(0) e_{\text{disp}} \frac{J_1(\sqrt{2T} \tau_0/t_p)}{\sqrt{2T} \tau_0/t_p} \Theta(T)\end{aligned}\quad (\text{II.58})$$

Sous cette hypothèse ( $e_{\text{disp}} = \tau_0/t_p \ll 1$ ), l'interaction d'une impulsion ultra brève avec la vapeur dense est donc dominée à temps long par le comportement de la fonction réponse  $R_L(T)$  et le champ total résultant s'identifie à cette dernière quand  $T > 1$ .

Pour  $0 < T \ll 1 \ll t_p/\tau_0$ , la fonction réponse varie peu et  $R_L(T) \simeq -1$ . Le champ rayonné est alors pratiquement constant et vaut :

$$\Omega_{ray}(T) = -e_{\text{disp}} \Omega(0, T = 0)/2 \quad (\text{II.59})$$

Ce champ rayonné constant correspond au cas des faibles épaisseurs optiques ( $\tau_0 \ll t_p$ ) et peut être associé au rayonnement de dipôles sans interaction.

Pour les temps longs ( $T \gg 1$ ), on note que l'enveloppe de la fonction réponse (figure II.6) présente des oscillations qui correspondent à la vérification simultanée des relations II.40 et II.41. A partir du développement asymptotique

$$R_L(T) \sim \left(\frac{t_p}{T\tau_0}\right)^{\frac{3}{4}} \cos\left(\sqrt{2T}\tau_0/t_p + \frac{\pi}{4}\right)$$

on obtient que la pseudopériode des oscillations croît proportionnellement à  $\sqrt{T}$ . Leur amortissement qui varie proportionnellement à  $(t_p/T\tau_0)^{\frac{3}{4}}$ , confère au champ rayonné une portée temporelle relativement importante. Le signe négatif du champ rayonné implique que l'amplitude maximale du champ total au temps  $T = 0$  est diminuée. L'énergie lumineuse initialement concentrée autour de  $T = 0$  est alors redistribuée à des échelles de temps plus grandes, et se retrouve dans la "queue" de dispersion oscillante de la fonction réponse.

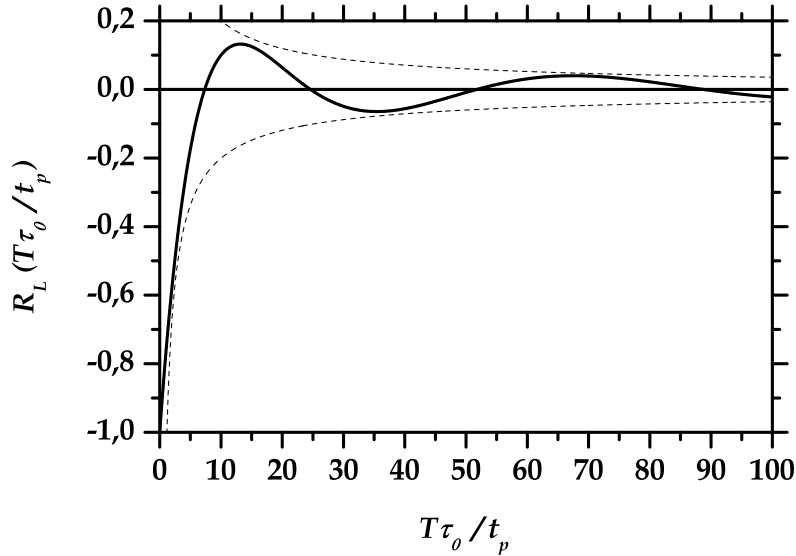


FIG. II.6 – Enveloppe de  $R_L(T\tau_0/t_p)$  : Les oscillations ont une période de plus en plus grande qui varie proportionnellement à  $\sqrt{T}$  et leur amplitude décroît avec une portée  $(t_p/T\tau_0)^{\frac{3}{4}}$  (représentée en pointillés). L'énergie de l'impulsion est redistribuée aux temps longs dans la "queue" de dispersion.

### II.2.1.2.2 Interprétation spectrale

Du point de vue spectral, on peut comprendre l'origine du comportement oscillatoire de l'enveloppe de l'impulsion après propagation en s'intéressant à la phase spectrale. En effet la phase spectrale de  $T(\omega)$  oscille d'autant plus rapidement que l'on est proche de la résonance. Ces oscillations sont représentées sur la figure II.7 sous la forme des parties réelle et imaginaire de  $T(\omega)$ . L'oscillation temporelle de la fonction réponse, peut être vue en première approximation comme un battement entre les lobes principaux visibles sur les parties réelle et imaginaire de  $T(\omega)$ . Ces lobes sont présents de part et d'autre de la résonance (figure II.7) et leur écart  $\alpha_0 L \Delta_D = e_{\text{disp}}/\tau_0$  correspond au domaine spectral où agit la dispersion.

On peut donner une autre interprétation de  $e_{\text{disp}}$  en effectuant un calcul semi-quantitatif sur le nombre de photons qui interagissent effectivement dans le processus. Le nombre de photons  $N_{\text{phot}}$  initialement présents dans l'impulsion est sensiblement donné par le rapport entre l'énergie totale de l'impulsion ( $\sim \varepsilon_0 \int |A(0, T)|^2 dT c \tau_0 S/2$ ) et l'énergie d'un photon

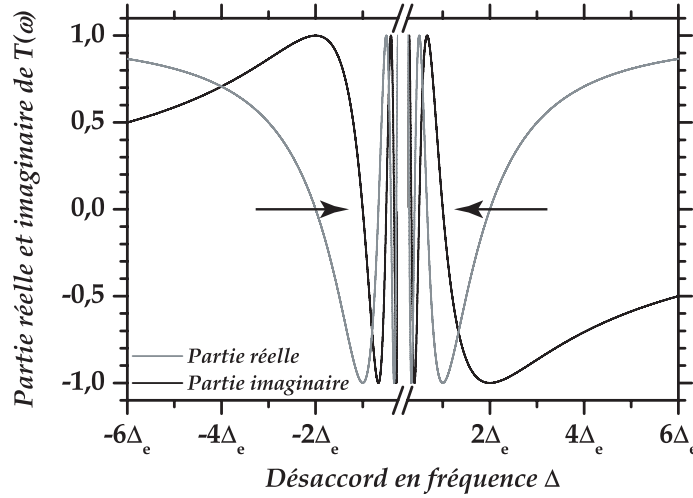


FIG. II.7 – Partie réelle et imaginaire de  $T(\omega)$  : L'échelle horizontale donne  $\Delta$  en unités de  $\Delta_e = e_{\text{disp}}/\tau_0$ . L'axe présente une coupure car au voisinage de la résonance ( $\Delta = 0$ ) les oscillations sont trop rapides pour être représentée. Les flèches donnent approximativement le domaine spectral affecté par la dispersion.

$\hbar\omega_L$ , soit :

$$N_{\text{phot}} = \frac{\hbar\varepsilon_0 c S}{\mu^2 \tau_0 \omega_L} \theta^2(0)$$

où  $S$  est la section du faisceau. Si on compare  $N_{\text{phot}}$ , au nombre de photons qui excitent avec une probabilité  $\theta^2(0)$ , les  $nSL$  atomes illuminés par le laser. Il y a donc  $N_{\text{phot}}^{\text{disp}}$  effectivement impliqués dans le phénomène de dispersion donné par  $N_{\text{phot}}^{\text{disp}} = nSL\theta^2(0)$  nous obtenons :

$$\frac{N_{\text{phot}}^{\text{disp}}}{N_{\text{phot}}} = e_{\text{disp}}$$

Ceci signifie que le nombre de photons concernés par les effets de propagation augmente avec  $e_{\text{disp}}$  et devient comparable au nombre de photons incidents dès que  $e_{\text{disp}} = 1$ . Le domaine spectral sur lequel agit la dispersion correspond donc à  $\Delta_e = e_{\text{disp}}/2\tau_0 = \alpha_0 L \Delta_D$ . Comme dit précédemment, la largeur d'absorption  $\Delta_{\text{abs}}$  croît quant à elle proportionnellement à  $\Delta_D \sqrt{\ln \alpha_0 L}$ . Ainsi quand on augmente l'épaisseur optique  $\alpha_0 L$ , le domaine spectral affecté par les effets de propagation croît beaucoup plus vite que celui concerné par l'absorption. A noter que  $\Delta_D$  apparaît au dénominateur dans l'expression de  $\alpha_0$  (équation II.19) et de ce fait  $\Delta_e$  est indépendant de  $\Delta_D$  contrairement à ce que pourrait laisser penser l'écriture précédente.

De la même manière on montre sans difficulté, que le rapport entre le champ rayonné et le champ incident suit la même relation :

$$\frac{A_{\text{ray}}}{A_{\text{inc}}} \simeq e_{\text{disp}}$$

Ainsi  $e_{\text{disp}}$  donne l'importance des effets de propagation. Lorsque  $e_{\text{disp}} \approx 1$ , cela signifie que le champ incident est fortement affecté. L'impulsion transmise a son énergie initiale dispersée dans le temps et réémise sous forme de précession libre par le champ rayonné.

## II.2.2 Cas d'une impulsion à dérive de fréquence (situation de champ faible)

Nous avons vu précédemment dans le chapitre I, que pour compenser le terme de dispersion quadratique d'un milieu transparent non résonant, on utilise des impulsions qui présentent un chirp de signe opposé à celui du matériau, de sorte que les deux effets se compensent. On peut alors se demander si l'on peut transposer ce résultat au cas où une impulsion à dérive de fréquence interagit avec un milieu dispersif résonant. Nous allons voir que cette situation qui ne peut pas être décrite par le théorème de McCall&Hahn, conduit à une modification particulièrement importante du profil d'intensité de l'impulsion. Ce problème a déjà été étudié par Grischkowsky *et al.* [23, 24] pour des impulsions longues en régime picoseconde. L'interprétation des résultats de ces études consiste à modéliser l'effet de remise en forme du champ qui se propage, comme résultant uniquement de l'interférence (hétérodynage) entre le champ incident et le champ rayonné considéré comme pratiquement constant. Dans notre cas, la présence de termes transitoires montre que le champ rayonné a une expression plus complexe et que le changement de forme temporelle dû à la propagation ne résulte pas d'un simple hétérodynage. Nous allons dériver une démonstration plus détaillée de l'interprétation donnée par Grischkowsky. Nous mettrons en évidence que le champ rayonné par les atomes joue un rôle essentiel dans ce phénomène, dont la description complète fait intervenir des interférences aussi bien au niveau atomique qu'au niveau optique.

### II.2.2.1 Remarque préliminaire

Lorsqu'une impulsion à dérive de fréquence excite un système résonant, des modulations d'intensité apparaissent aussi bien sur les quantités atomiques que sur le profil temporel d'impulsion [46]. Ces modulations sont analogues aux franges de diffraction d'un bord d'écran en régime de Fresnel. Cette analogie formelle qui existe entre le phénomène temporel et le phénomène spatial qu'est la diffraction de Fresnel (qui présentent tout deux un phase quadratique), a été utilisée par certains auteurs pour donner une image plus familière du phénomène temporel et l'appliquer au contrôle cohérent [57]. Lorsque les modulations apparaissent sur le profil temporel de l'impulsion il est alors possible d'extraire la phase du champ exciteur. La diffraction d'une telle impulsion sur un réseau induit par la lumière permet également d'isoler spatialement la réponse du système dans une configuration de mélange à quatre ondes non colinéaire [47].

Les modulations d'intensité sont en fait une propriété universelle lorsqu'une impulsion large bande avec une dérive de fréquence excite une résonance. En effet, pour un système dont la réponse  $R(t)$  est linéaire et causale ( $R(t < 0) = 0$ ), les relations de Kramers et Kronig :

$$f_1(\omega) = \frac{2}{\pi} \int_0^{+\infty} \frac{\omega' f_2(\omega') d\omega'}{\omega^2 - \omega'^2} \quad (\text{II.60a})$$

$$f_2(\omega) = \frac{2\omega}{\pi} \int_0^{+\infty} \frac{f_1(\omega') d\omega'}{\omega^2 - \omega'^2} \quad (\text{II.60b})$$

relient  $f_1(\omega)$  et  $f_2(\omega)$  respectivement les parties réelle et imaginaire de  $f(\omega) = f_1(\omega) +$

$if_2(\omega)$ , où  $f(\omega)$  la transformée de Fourier de  $R(t)$ . Si la largeur du profil de raie de résonance est négligeable, la partie imaginaire de la réponse se comporte alors asymptotiquement comme  $\sim 1/\omega$ . Nous avons vu l'expression de la fonction réponse correspondant à une telle forme de la dispersion (II.51 et II.54). L'analyse que nous allons donner et qui fait intervenir cette fonction réponse, est alors facilement généralisable à un grand nombre de situations, y compris celles où plusieurs résonances interviennent et produisent un battement plus ou moins complexe [58].

### II.2.2.2 Champ rayonné par le système

**ATTENTION :** Dans ce qui suit, nous allons présenter des résultats expérimentaux. Afin de discuter avec des grandeurs mesurables plutôt qu'avec des paramètres sans dimension, nous avons réexprimé toutes les équations dérivées précédemment. Par exemple, nous avons remplacé  $T$  par  $t = \tau_0 T$  ou bien encore  $e_{disp}$  par  $\alpha_0 L \Delta_D = e_{disp}/2\tau_0$ .

Une impulsion laser ultra courte de pulsation centrale  $\omega_L$  et de durée  $\tau_0$  est étirée à l'aide d'un dispositif qui introduit une phase spectrale quadratique caractérisée par son chirp  $\phi_0''$ . L'impulsion se propage à travers une vapeur atomique constituée d'un ensemble de systèmes à deux niveaux dont la pulsation de résonance est  $\omega_{21}$ . Le champ électrique associé à l'impulsion à l'entrée du milieu peut être écrit  $E(t) = \underline{A}_C(0, t)e^{-i\omega_L t} + c.c.$ , où  $t = t_{\text{réel}} - z/c$  est le temps retardé. L'enveloppe  $\underline{A}_C(0, t)$  du champ électrique associé à une impulsion à dérive de fréquence s'écrit (cf chapitre I, relation I.6) :

$$\underline{A}_C(0, t) = \frac{A_0}{2} \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_C}} e^{-\left(\frac{t}{\tau_C}\right)^2} e^{-i\alpha_C t^2} \quad (\text{II.61})$$

où  $\tau_C = \tau_0 \sqrt{1 + 4\phi_0''^2/\tau_0^4}$  est la durée de l'impulsion étirée et  $\alpha_C = 2\phi_0''/\tau_C^2\tau_0^2$  le paramètre qui traduit une dérive de la fréquence instantanée  $\omega_i(t) = \omega_L + 2\alpha_C t$  du champ électrique au cours de la durée de l'impulsion. Dans le cas d'une impulsion fortement chirpée, c'est-à-dire où  $\sqrt{\phi_0''} \gg \tau_0/\sqrt{2}$ , on a  $\tau_C \approx 2\phi_0''/\tau_0$  et  $\alpha_C \approx 1/2\phi_0''$ . Une impulsion à dérive de fréquence de durée  $\tau_C$  peut être à tout instant vue comme une onde quasi monochromatique de durée  $\sqrt{\phi_0''}$  dont la fréquence instantanée  $\omega_i(t)$  balaye la spectre  $S(\omega)$  au cours du temps. Les impulsions à dérive de fréquence ont la particularité de réaliser une homothétie temps-fréquence qui permet d'associer à chaque instant une fréquence particulière (la fréquence instantanée du laser).

Après propagation le champ total à la sortie du milieu peut se décomposer comme la somme entre le champ incident et le champ rayonné :

$$A(L, t) = \underline{A}_C(0, t) + A_{\text{ray}}(L, t) \quad (\text{II.62})$$

Le champ rayonné est donné par (cf relation II.56) :

$$A_{\text{ray}}(L, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} R_L(t - t') \underline{A}_C(0, t') dt' \quad (\text{II.63})$$

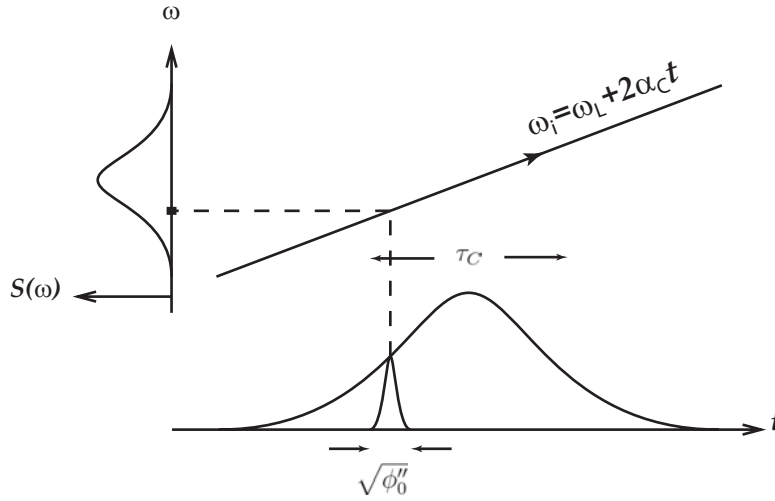


FIG. II.8 – Représentation quasi monochromatique et homothétie temps-fréquence d'une impulsion à dérive de fréquence : *L'impulsion peut être vue comme une impulsion quasi monochromatique de durée  $\sqrt{\phi_0''}$  dont la fréquence instantanée  $\omega_i(t)$  balaye le spectre  $S(\omega)$  de l'impulsion.*

où  $R_L(t')$  est la fonction réponse<sup>h</sup> du milieu donnée par (cf relation II.57) :

$$R_L(t) = -2\alpha_0 L \Delta_D \frac{J_1(2\sqrt{\alpha_0 L \Delta_D t})}{2\sqrt{\alpha_0 L \Delta_D t}} e^{-i\Delta t} \Theta(t) \quad (\text{II.64})$$

où  $J_1$  est la fonction de Bessel du premier ordre et  $\Theta(t)$  la distribution de Heaviside (du fait de la causalité,  $R_L(t < 0) = 0$ ). Examinons dans un premier temps le cas des milieux peu denses pour lesquels :

$$\sqrt{2\phi_0''} \ll (\alpha_0 L \Delta_D)^{-1} \quad (\text{II.65})$$

c'est-à-dire que la durée des impulsions est petite devant les échelles de temps de variation de la fonction réponse. On peut alors faire l'approximation  $R_L(t) \simeq -\alpha_0 L \Delta_D e^{-i\Delta t} \Theta(t)$ . Dans ces conditions, le champ rayonné vaut :

$$A_{\text{ray}}(L, t) = -\alpha_0 L \Delta_D \frac{A_0}{2} \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_C}} e^{-i\Delta t} \int_{-\infty}^t e^{-\left(\frac{t'}{\tau_C}\right)^2} e^{-i\alpha_C t'^2} e^{i\Delta t'} dt' \quad (\text{II.66})$$

Après calcul, il vient que <sup>i</sup> :

$$A_{\text{ray}}(L, t) = -\frac{1}{2} \sqrt{\pi} \underline{A}_0 e_{\text{disp}} S_C(t) e^{\frac{i}{2}\varphi_C} e^{-\frac{\Delta^2 \tau_0^2}{4}} e^{-i\Delta t} \quad (\text{II.68})$$

<sup>h</sup> Identique à la définition II.54 excepté le désaccord en fréquence  $e^{-i\Delta t}$  qui est maintenant inclus, et la distribution de Dirac  $\delta(t)$  qui donne le terme  $\underline{A}_C(0, t)$  dans la décomposition de  $A(L, t)$

<sup>i</sup> Le champ rayonné est donné par le dipôle qui est proportionnel à l'amplitude dans l'état excité  $b(t)$ . Il a donc une expression similaire à  $b(t)$  donnée quant à elle par [30, 59, 60] :

$$b(t) \propto i \frac{\mu_{12} A_0}{\hbar} \sqrt{\pi} \tau_0 e^{-\frac{\Delta^2 \tau_0^2}{4}} S_C(t) \quad (\text{II.67})$$



avec  $\varphi_C = \Delta^2 \phi_0'' + \frac{\pi}{2}$ . La fonction  $S_C(t)$  est donnée par :

$$S_C(t) = \frac{1}{2} \left[ 1 + \operatorname{erf} \left( \frac{t - t_X}{\sqrt{\tau_0 \tau_C}} \cdot \frac{1 + i}{\sqrt{2}} \right) \right] \quad (\text{II.69})$$

avec  $\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-z^2} dz$  la fonction erreur [54] et  $t_X = \Delta/2\alpha_C \approx \Delta \cdot \phi_0''$  l'instant de passage à résonance. La fonction  $S_C(t)$  est de type Spirale de Cornu comme représentée sur la figure II.9. On note que  $\omega_i(t_X) = \omega_L + t_X \phi_0'' = \omega_{21}$ , la fréquence instantanée du laser est égale à la fréquence de résonance du système.

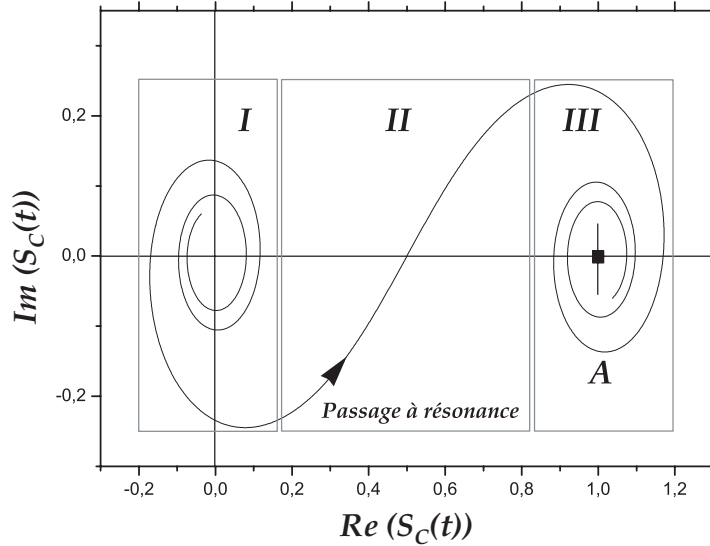


FIG. II.9 – Représentation complexe de la spirale de Cornu  $S_C(t)$  : Dans la zone I (avant le passage à résonance), la spirale oscille autour de l'origine. Le module du vecteur associé à la trajectoire sur la spirale croît progressivement sans présenter d'oscillation. Le passage à résonance s'effectue dans la zone II et le module croît rapidement sur une durée caractéristique de l'ordre de  $2\sqrt{\phi_0''}$ . Après le passage à résonance, la spirale oscille dans la zone III autour du point A associé à la valeur asymptotique atteinte par le champ rayonné. Cette valeur asymptotique est dépassée de manière transitoire. Les oscillations autour de A (de coordonnées non nulles), se traduisent par des oscillations (voir figure II.10) du module au voisinage de sa valeur asymptotique constante.

Pour  $t < t_X - \sqrt{\phi_0''}$  le champ rayonné est sensiblement égal à zéro ( $S_C(t) \rightarrow 0$ ). Pour  $t > t_X + \sqrt{\phi_0''}$  le champ rayonné comprend deux contributions  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  et  $A_{\text{ray}}^{\text{trans}}(t)$ . La première contribution  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  est un champ d'amplitude constante égale à la valeur asymptotique du champ rayonné.  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  est défini par :

$$A_{\text{ray}}^{\text{res}} = -\frac{1}{2} \sqrt{\pi} A_0 e_{\text{disp}} e^{\frac{i}{2} \varphi_C} e^{-\frac{\Delta^2 \pi_0^2}{4}} e^{-i \Delta t} \quad (\text{II.70})$$

Si on utilise la relation suivante :

$$\operatorname{erf}(x) = 1 + \sqrt{2} e^{-i \frac{3\pi}{4}} \left( f \left( \sqrt{2/\pi} e^{i \frac{\pi}{4}} x \right) - i g \left( \sqrt{2/\pi} e^{i \frac{\pi}{4}} x \right) \right) e^{-x^2} \quad (\text{II.71})$$

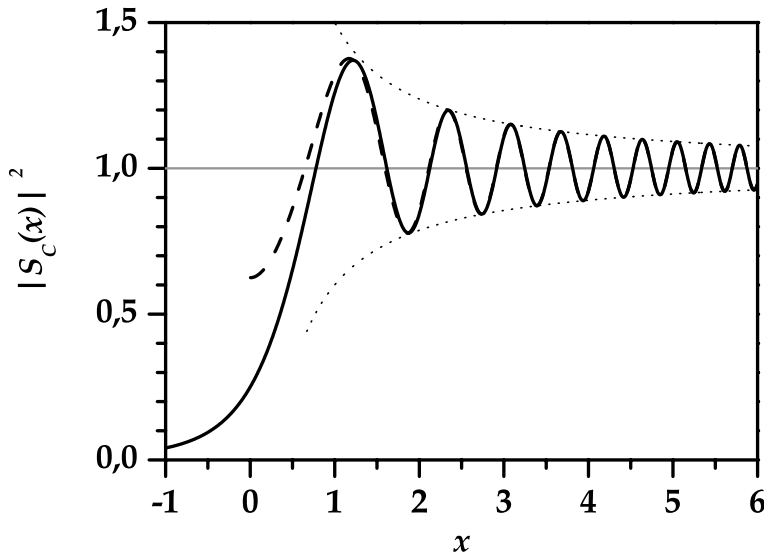


FIG. II.10 – Allure de  $|S_C(x)|^2$  à résonance ( $\Delta = 0$ ,  $x = t/\sqrt{\tau_0\tau_C}$ ,  $t_X = 0$ ) :  $|S_C(x)|^2$  est représenté en trait continu. La valeur asymptotique est représentée par l'horizontale grisée. En tirets, la valeur approchée  $|S_C(x)|^2$  calculé en utilisant uniquement la contribution de la fonction auxiliaire  $f$  de Fresnel. En pointillés, l'enveloppe correspondant au développement  $f(x) \sim 1/\pi x$ .

où  $f(x)$  et  $g(x)$  sont les fonctions auxiliaires de Fresnel définies par :

$$\begin{aligned} f(x) &= [1/2 - S_F(x)] \cos\left(\pi \frac{x^2}{2}\right) - [1/2 - C_F(x)] \sin\left(\pi \frac{x^2}{2}\right) \\ g(x) &= [1/2 - C_F(x)] \cos\left(\pi \frac{x^2}{2}\right) + [1/2 - S_F(x)] \sin\left(\pi \frac{x^2}{2}\right) \end{aligned} \quad (\text{II.72})$$

où

$$C_F(x) = \int_0^x \cos\left(\pi \frac{u^2}{2}\right) du \quad \text{et} \quad S_F(x) = \int_0^x \sin\left(\pi \frac{u^2}{2}\right) du \quad (\text{II.73})$$

sont le cosinus et le sinus de Fresnel. Si on remplace  $f(x)$  et  $g(x)$  par leur développement asymptotique

$$f(x) \approx \frac{1}{\pi x} \quad \text{et} \quad g(x) \approx \frac{1}{\pi^2 x^3} \quad (\text{II.74})$$

on peut alors simplifier l'expression de  $A_{\text{ray}}^{\text{trans}}(t)$ . Après calcul et en négligeant  $g(x)$  qui décroît beaucoup plus vite que  $f(x)$ , on obtient :

$$\boxed{A_{\text{ray}}^{\text{trans}}(t) = -A_{\text{ray}}^{\text{res}} \frac{\sqrt{\tau_0\tau_C/\pi}}{2(t-t_X)} e^{-i\frac{\pi}{4}} e^{-i\frac{(t-t_X)^2}{\tau_0\tau_C}}} \quad (\text{II.75})$$

NB : Nous avons choisi comme notation  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  pour la partie résonante et  $A_{\text{ray}}^{\text{trans}}(t)$  pour la partie transitoire. Bien que  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  dépende du temps à travers le terme  $e^{-i\Delta t}$  nous ne

le noterons pas  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}(t)$ . Comme ce champ d'amplitude constante est **toujours** rayonné à la fréquence de la transition, nous omettrons cette dépendance. Elle ne provient que du fait que nous référençons les fréquences par rapport à la fréquence centrale du champ incident. Nous omettrons également la dépendance en  $z$  de ces champs ( $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  et  $A_{\text{ray}}^{\text{trans}}(t)$ ) qui est incluse dans le paramètre  $e_{\text{disp}}$ .

En résumé, le champ rayonné  $A_{\text{ray}}(L, t)$  comprend donc deux contributions : d'une part une partie transitoire  $A_{\text{ray}}^{\text{trans}}(t)$  dont la fréquence suit celle du champ excitateur et qui s'amortit au cours du temps. D'autre part on a une partie asymptotique  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  qui correspond donc au champ rayonné à résonance et qui s'établit sur une durée de l'ordre de  $2\sqrt{\phi_0''}$ . Si on décompose le champ rayonné sur les intervalles de temps  $]-\infty, t_X - \sqrt{\phi_0''}]$  et  $[\sqrt{\phi_0''}, t_X + \infty[$ , c'est-à-dire en dehors du passage à résonance où le champ croît rapidement, on obtient :

$$\begin{cases} A_{\text{ray}}(L, t) = 0 & t < t_X - \sqrt{\phi_0''} \\ A_{\text{ray}}(L, t) = A_{\text{ray}}^{\text{res}} + A_{\text{ray}}^{\text{trans}}(t) & t > t_X + \sqrt{\phi_0''} \end{cases} \quad (\text{II.76})$$

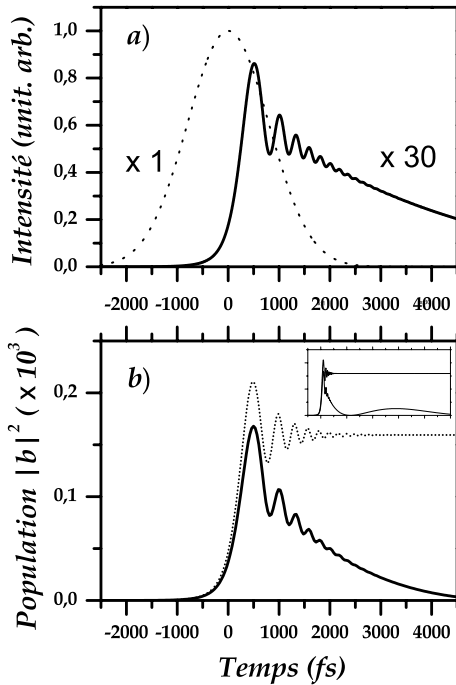


FIG. II.11 – Intensité et population - Simulations ( $e_{\text{disp}} = 1,9 \times 10^{-2}$ ,  $\phi_0'' = \phi_m'' = 31500 \text{ fs}^2$ ,  $z = L$ ) : En a), l'intensité du champ incident est représentée en pointillés, l'intensité ( $\times 30$ ) du champ rayonné en trait continu. Le champ rayonné présente des oscillations dues à sa composante transitoire. Les oscillations s'ajoutent au profil du champ rayonné résonant qui évolue temporellement comme la fonction réponse du système. En b), population dans l'état excité calculé à l'entrée du milieu (en pointillés) et après propagation (en trait continu). Les variations rapides sont dues aux transitoires cohérents (à l'entrée et à la sortie). Les variations lentes (à la sortie), représentées en insert, sont dues à l'excitation par le champ dispersé.

La figure II.11.a représente l'intensité du champ rayonné. Ce résultat est obtenu par résolution numérique des équations de Maxwell-Schrödinger. La soustraction du champ incident au champ total permet d'extraire le champ rayonné. Comme discuté précédemment, l'intensité du champ rayonné croît et devient importante sur une durée  $\sqrt{\phi_0''}$  et présente ensuite des oscillations d'amplitude décroissante, qui traduisent l'excitation par une impulsion chirpée. Le champ rayonné oscille autour d'une courbe lentement variable qui correspond au profil de la fonction réponse  $R_L(T)$  du milieu. Ces variations se produisent sur un temps caractéristique de  $(\alpha_0 L \Delta_D)^{-1}$  et seule le début de la fonction réponse

décroissante est représentée sur cette durée. Sur la figure II.11.b nous avons également représenté le comportement de la population dans l'état excité, calculée à l'entrée et à la sortie du milieu. Là encore nous pouvons remarquer que des oscillations sont présentes. A l'entrée les oscillations sont dues aux interférences entre les amplitudes de probabilité transférées à résonance et hors résonance, décrites par la spirale de Cornu. A la sortie du milieu, à cause des effets de propagation, la population dans l'état excité oscille, comme le champ rayonné, autour du profil lentement variable de la fonction réponse (*cf* figure II.6) qui n'est représentée intégralement (seul la décroissance à temps court apparaît sur la figure II.11).

### II.2.2.3 Champ transmis

Après propagation l'intensité totale  $I_{\text{tot}}(L, t)$  à la sortie du milieu, supposé peu dense, est donnée d'après II.62 par :

$$\begin{aligned} I_{\text{tot}}(L, t) &= |A(L, t)|^2 \simeq |\underline{A}_C(0, t)|^2 + (\underline{A}_C(0, t)A_{\text{ray}}^*(L, t) + c.c.) \\ &\simeq I_C(0, t) + (\underline{A}_C(0, t)A_{\text{ray}}^*(L, t) + c.c.) \end{aligned} \quad (\text{II.77})$$

avec

$$I_C(0, t) = \frac{|\underline{A}_0|^2}{4} \frac{\tau_0}{\tau_C} e^{-2\left(\frac{t}{\tau_C}\right)^2} \quad (\text{II.78})$$

En effet dans l'hypothèse des faibles épaisseurs optiques, l'intensité du champ rayonné peut être négligée dans l'équation II.77, comme illustré sur la figure II.11a par le facteur 30. Ainsi, l'intensité  $I_{\text{tot}}(L, t)$  résulte de la somme entre un terme lentement variable  $I_C(0, t)$  et un terme croisé responsable des oscillations que l'on observe sur la figure II.12. Le terme croisé contient les contributions  $K_{\text{res}}(t)$  et  $K_{\text{trans}}(t)$  dues respectivement à l'interférence entre le champ incident  $\underline{A}_C(0, t)$  et d'une part le champ rayonné résonant  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  et d'autre part avec le champ rayonné transitoire  $A_{\text{ray}}^{\text{trans}}(t)$ . L'intensité totale est donc la somme de trois contributions :

$$I_{\text{tot}}(L, t) = I_C(0, t) + K_{\text{res}}(t) + K_{\text{trans}}(t) \quad (\text{II.79})$$

Après calcul,  $K_{\text{res}}(t)$  et  $K_{\text{trans}}(t)$  sont données (d'après les relations II.61, II.75 et II.75) par

$$K_{\text{res}}(t) = -\frac{1}{2} |\underline{A}_0|^2 e_{\text{disp}} \sqrt{\pi} \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_C}} e^{-\left(\frac{t}{\tau_C}\right)^2} e^{-\frac{\Delta^2 \tau_0^2}{4}} \cos(\alpha_C t^2 - \Delta t + \varphi_C/2) \quad (\text{II.80})$$

et par

$$K_{\text{trans}}(t) = \frac{|\underline{A}_0|^2 \tau_0 e_{\text{disp}}}{4(t - t_X)} e^{-\left(\frac{t}{\tau_C}\right)^2} e^{-\frac{\Delta^2 \tau_0^2}{4}} \cos \eta(t) \quad (\text{II.81})$$

où  $\eta(t) = \alpha_C t^2 - \Delta t + \varphi_C/2 - \pi/4 - (t - t_X)^2/\tau_0 \tau_C$ . Lorsqu'on ne fait pas d'approximations sur les expressions de  $\tau_C$ ,  $\alpha_C$ ,  $\phi_C$  et  $t_X$ , on montre que  $\eta$  ne dépend pas du temps. Par ailleurs, ce terme tend vers zéro pour des impulsions fortement chirpées (d'après les expressions de  $\tau_C$ ,  $\alpha_C$ ,  $\phi_C$  et  $t_X$ ).

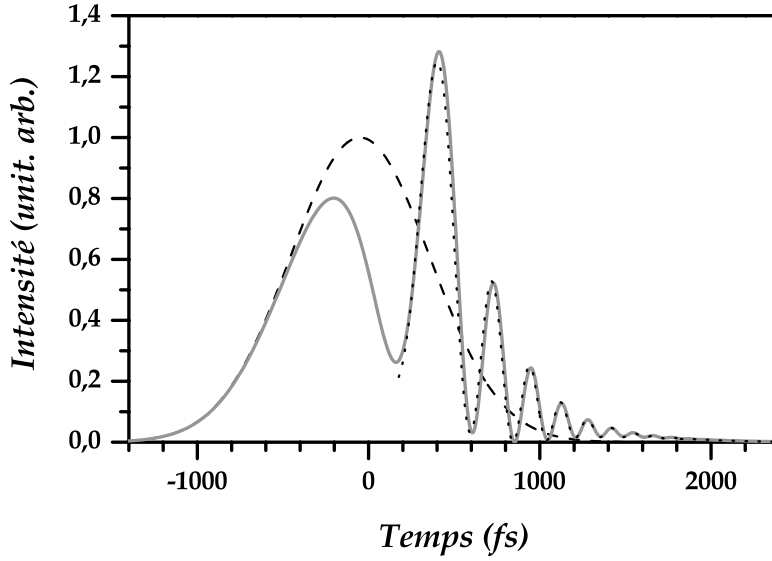


FIG. II.12 – Simulations - Contribution du champ rayonné résonant ( $e_{\text{disp}} = 9,5 \times 10^{-2}$ ,  $\phi_0'' = \phi_m'' = 31500 \text{ fs}^2$ ) : L'intensité du champ incident  $I_C(0, t)$  est représentée en tirets. L'intensité  $I_{\text{tot}}(L, t)$  après propagation calculée numériquement est représentée par la courbe grise. En pointillés, nous avons représenté pour  $t > \sqrt{\phi_0''}$ , l'intensité transmise calculée (analytiquement à partir de  $I_C(0, t) + K_{\text{res}}(t)$ ) seulement avec la contribution du champ rayonné résonant.

La contribution transitoire décroît très rapidement dès que  $t > t_X$  le passage à résonance. Cette contribution peut donc être négligée devant  $I_C(0, t)$  et  $K_{\text{res}}(t)$ . L'intensité transmise présente alors une modulation en  $\cos(\alpha_C t^2 - \Delta t + \varphi_C/2)$  due à  $K_{\text{res}}(t)$ . Puisque les impulsions sont fortement chirpées  $\eta \simeq 0$ , soit encore :

$$\cos(\alpha_C t^2 - \Delta t + \varphi_C/2) = \cos((t - t_X)^2/\tau_0\tau_C + \pi/4)$$

Finalement le rapport entre le terme de modulation et l'intensité incidente est donnée par :

$$\boxed{\frac{K_{\text{res}}(t)}{I_C(0, t)} \propto e_{\text{disp}} \sqrt{\frac{\tau_C}{\tau_0}} e^{-\frac{\Delta^2 \tau_0^2}{4}} \cos((t - t_X)^2/\tau_0\tau_C + \pi/4)} \quad (\text{II.82})$$

Notons que d'après II.70 l'amplitude du champ rayonné :

$$A_{\text{ray}}^{\text{res}} = -\frac{1}{2} \sqrt{\pi} \underline{A}_0 e_{\text{disp}} e^{\frac{i}{2}\varphi_C} e^{-\frac{\Delta^2 \tau_0^2}{4}} e^{-i\Delta t}$$

est indépendante du chirp  $\phi_0''$ . Quand la valeur du chirp augmente, l'amplitude du champ incident (II.61) :

$$\underline{A}_C(t) = \frac{\underline{A}_0}{2} \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_C}} e^{-\left(\frac{t}{\tau_C}\right)^2} e^{-i\alpha_C t^2}$$

décroit comme  $\sqrt{\tau_0/\tau_C} = \sqrt{\tau_0^2/2\phi_0''}$  alors que celle de  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  reste constante. Lorsque les amplitudes de ces deux champs deviennent comparables pour des chirps importants, le contraste des oscillations augmente alors en  $\sqrt{\tau_C/\tau_0}$  (équation II.82).

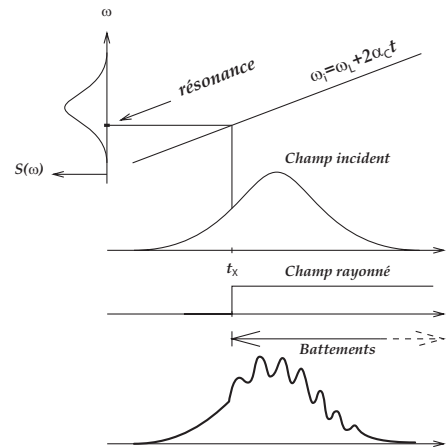
Ainsi, à épaisseur optique fixée, une impulsion à dérive de fréquence est plus sensible aux effets de dispersion qu'une impulsion limitée par transformée de Fourier ayant le même spectre en amplitude. Ce point sera illustré dans la partie II.2.2.4.3.

Parallèlement à cela nous avons mis en avant le fait qu'il existe deux types d'interférences. Tout d'abord au sein du champ rayonné, les interférences provenant de l'excitation du système par le champ incident à résonance et hors résonance, sont analogues à celles observées dans les transitoires cohérents [30]. Ces interférences quantiques sont visibles sur l'enveloppe du champ rayonné (figure II.11a). Notons que sur ces deux contributions du champ rayonné, seule la partie résonante interfère avec le champ incident et conduit à une modulation de l'intensité transmise par battement (figure II.13).

Enfin, une description plus précise de la forme de  $A_{\text{ray}}^{\text{res}}$  peut être donnée en tenant compte de la variation temporelle de la fonction réponse. Dans la mesure où l'apparition du champ rayonné se produit sur une échelle de temps  $\sqrt{\phi_0''} \ll \alpha_0 L \Delta_D$  beaucoup plus courte que le temps caractéristique des variations de la fonction réponse,  $R_L(t)$  peut être factoriser hors de l'intégrale dans la relation II.63. On a alors :

$$A_{\text{ray}}^{\text{res}} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \underline{A}_0 R_L(t) \tau_0 e^{\frac{i}{2} \varphi_C} e^{-\frac{\Delta^2 \tau_0^2}{4}} \quad (\text{II.83})$$

FIG. II.13 – Rôle du champ rayonné - Représentation temporelle : Quand la fréquence instantanée est égale à la fréquence de résonance du système, le champ rayonné est émis en  $t = t_X$  à la fréquence de transition du système. Les deux champs ont deux fréquences différentes (et dont la différence augmente dans le temps). Puisqu'ils se superposent temporellement un battement apparaît sur le profil de l'impulsion transmise  $I_{\text{tot}}$ .



### II.2.2.4 Impulsion à dérive de fréquence en champ faible : Expérience

L'expérience dont le montage est représenté sur la figure II.14, est réalisée dans une vapeur atomique de barium sur la transition  $6s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 6s6p \ ^3P_1$  à 791,13 nm ( $f_{osc} = 8.10^{-3}$ ). L'oscillateur femtoseconde délivre des impulsions de  $\tau_0 = 75\text{fs}$  à une longueur d'onde  $\lambda_L$  comprise entre 777 et 805 nm. Le faisceau laser est séparé en deux parties : une partie sert d'impulsion de référence pour mesurer les profils temporels de  $I_{tot}$  par corrélation d'intensité. Le deuxième faisceau est tout d'abord envoyé (en triple passage) dans un barreau de verre SF58, de 11 cm de long. En sortie de ce barreau, l'impulsion est chirpée positivement. L'impulsion se propage ensuite dans un étireur constitué d'une paire de réseaux en double passage, qui permet quant à lui d'introduire un chirp négatif. En variant la distance entre les réseaux, on peut ainsi faire varier le chirp total de l'impulsion. Celle-ci est étirée sur des durées de l'ordre de la picoseconde. Elle est envoyée dans le four contenant la vapeur atomique de barium. La température du four qui varie entre 750 à 850°C, permet de contrôler l'épaisseur optique. Dans cette gamme de température la largeur Doppler est de 0,845 GHz. De l'argon est utilisé comme gaz tampon à une pression de 10 à 15 mbar. L'intensité temporelle du faisceau transmis est mesurée par corrélation avec le faisceau de référence. Pour cela on réalise une somme de fréquence (SFG) dans un cristal de BBO. Le signal de SFG est mesuré par un photomultiplicateur. La durée  $\tau_0$  de l'impulsion de référence fixe la résolution temporelle de l'expérience.

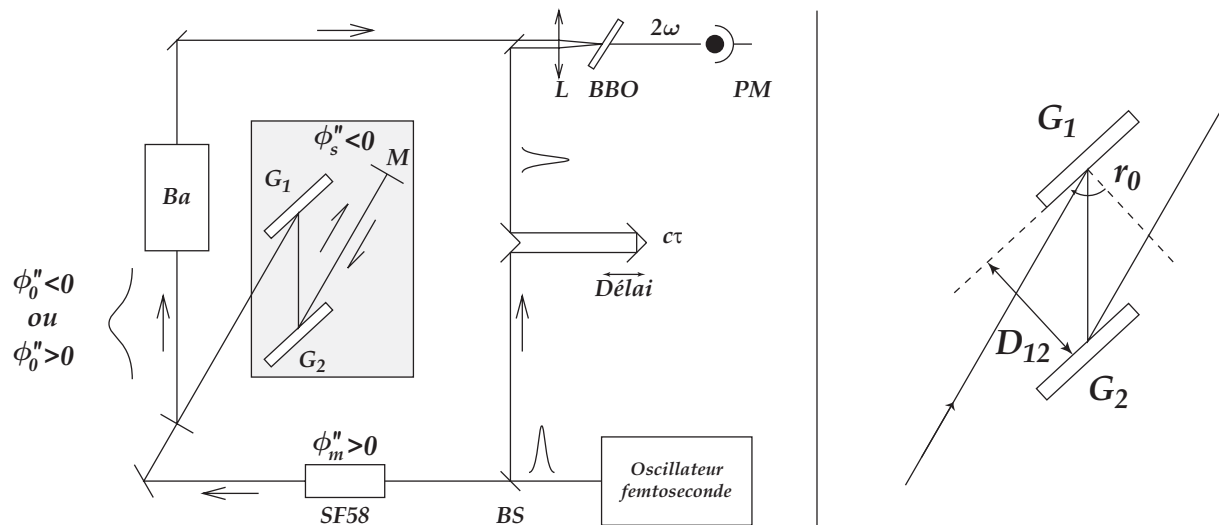


FIG. II.14 – Propagation d'impulsions chirpées - Montage expérimental : Les impulsions sont issues de l'oscillateur. Une partie du faisceau (30%) est prélevée (BS) comme référence pour la corrélation d'intensité. Le faisceau principal est étiré par un ensemble verre dispersif (SF58) - paire de réseaux en double passage ( $G_1G_2M$ ) qui permet de varier le chirp continûment entre zéro et sa valeur maximale de  $120000 \text{ fs}^2$ . L'impulsion chirpée se propage dans la vapeur de barium (Ba) présente dans le four. Le profil temporel de l'impulsion transmise est mesuré par corrélation d'intensité avec la référence. Le signal de somme de fréquence issu du cristal doubleur de BBO est détecté par un photomultiplicateur (PM).

Le SF58 utilisé pour étirer l'impulsion, est un matériau très dispersif. En triple passage ( $l=33\text{cm}$ ), le barreau introduit un chirp total  $\phi_m''=31500\text{fs}^2$  calculé à partir de la formule

$$\phi_m'' = \frac{2l}{c} \frac{\partial^2(\omega n(\lambda))}{\partial \omega^2} = \frac{4l}{c} \left( \frac{\pi c}{\lambda} \frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2} + \frac{\partial n}{\partial \omega} \right)$$

avec

$$\frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi^2 c^2} \frac{\partial n}{\partial \lambda} + \frac{\lambda^4}{4\pi^2 c^2} \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} \quad \text{et} \quad \frac{\partial n}{\partial \omega} = \frac{\lambda^2}{2\pi c^2} \frac{\partial n}{\partial \lambda}$$

où l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde  $n(\lambda)$  est donné par la formule :

$$n^2(\lambda) = A_0 + A_1 \lambda^2 + A_2 \lambda^{-2} + A_3 \lambda^{-4} + A_4 \lambda^{-6} + A_5 \lambda^{-8} \quad (\text{II.84})$$

Les coefficients de  $A_n$  dépendent du matériau considéré. Le tableau II.1 donne les valeurs de  $A_n$  pour le SF58 et le BK7. La dispersion introduite par la paire de réseaux est donnée par [61] :

$$\frac{d^2 \phi}{d\omega^2} = -\frac{4\pi^2 c}{d^2 \omega_L^3 \cos^2 r_0} D_{12} < 0 \quad (\text{II.85})$$

où  $D_{12}$  est la distance entre les réseaux,  $d$  le pas du réseau et  $r_0$  est l'angle par rapport à la normale. Le chirp total  $\phi_0''$  dû au passage à travers le barreau et l'étireur à réseaux :

$$\phi_0'' = \phi_m'' - \frac{4\pi^2 c}{d^2 \omega_L^3 \cos^2 r_0} D_{12} \quad (\text{II.86})$$

peut ainsi prendre des valeurs positives, négatives ou nulles et cela simplement en changeant la distance entre les réseaux.

	BK7	SF58
$A_0$	2,2718929	3,4782654
$A_1$	$-1,0108077 \cdot 10^{-2}$	$-1,0766912 \cdot 10^{-2}$
$A_2$	$1,0592509 \cdot 10^{-2}$	$5,8676907 \cdot 10^{-2}$
$A_3$	$2,0816965 \cdot 10^{-4}$	$4,2207315 \cdot 10^{-3}$
$A_4$	$-7,6472538 \cdot 10^{-6}$	$-2,2895268 \cdot 10^{-4}$
$A_5$	$4,9240991 \cdot 10^{-7}$	$4,0847905 \cdot 10^{-5}$

TAB. II.1 – Coefficients de dispersion (II.84) pour le BK7 et le SF58 (Schott). ATTENTION : pour ces valeurs des coefficients  $A_n$ , les longueurs d'ondes doivent être exprimées en  $\mu\text{m}$ .

#### II.2.2.4.1 Etude avec l'épaisseur optique $\alpha_0 L$

Les résultats pour quatre différentes températures du four sont donnés sur la figure II.15. Chacune de ces températures est associée à une épaisseur optique. Les valeurs sont reportées dans le tableau II.2. Les paramètres du laser sont fixés à  $\Delta\lambda_{1/2} = 9\text{nm}$  (FWHM du spectre) et  $\lambda_L = 791,13\text{nm}$ . Le chirp  $\phi_0'' = \phi_m'' = 31500\text{fs}^2$  correspond à une durée  $\tau_C \simeq 840\text{fs}$  de l'impulsion initiale. Après propagation, l'impulsion présente une déformation qui



se traduit par des oscillations dont la période caractéristique est de quelques centaines de femtosecondes, plus courte que la durée de l'impulsion à l'entrée du milieu. La relation II.82 montre que le contraste des modulations est proportionnel à l'épaisseur optique à travers  $e_{\text{disp}}$ , et croît donc quand la densité augmente avec la température ( $I_{\text{res}}(t)/I_C(0, t) \propto \alpha_0 L \propto n$ ). Nous obtenons un accord raisonnable entre les courbes expérimentales et les courbes théoriques (figure II.16) obtenues par résolution numérique des équations de propagation (II.17). Les valeurs de l'épaisseur optique obtenues par ajustement sont reportées dans le tableau II.2.

T(°C)	$p_{\text{Ba}}$ (mmHg)	$\alpha_0 L$	$\alpha_0 L _{\text{fit}}$
700	0,1	90	150
750	0,3	260	300
800	0,8	660	600
850	2,0	1590	1400

TAB. II.2 – Pression de vapeur saturante de Ba et épaisseur optique  $e = \alpha_0 L$  correspondante

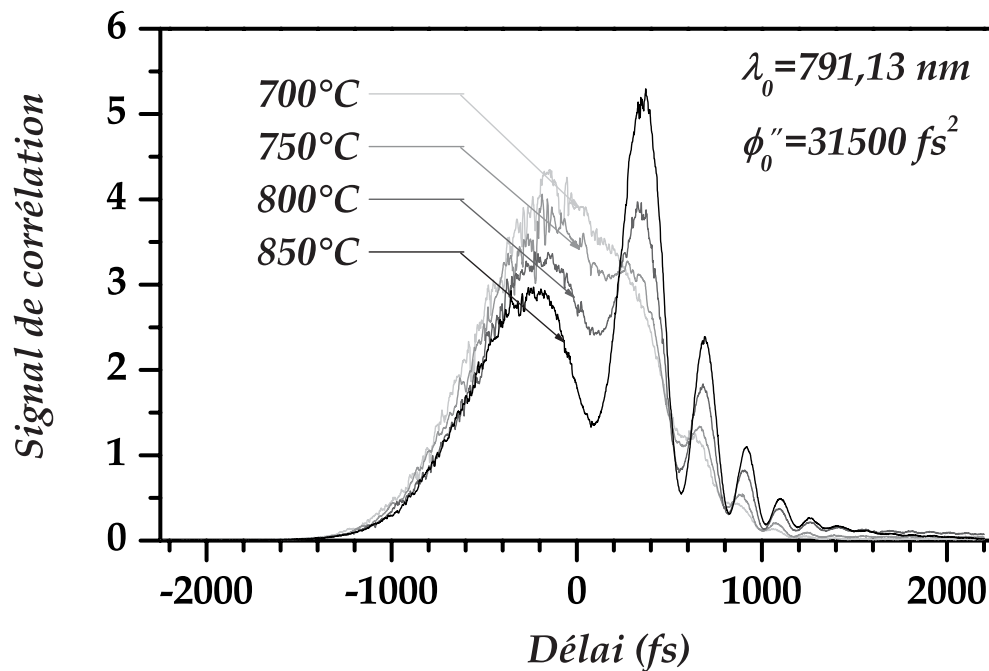


FIG. II.15 – Corrélation d'intensité de l'impulsion transmise : La fréquence centrale de l'impulsion est accordée sur la résonance à 791,13 nm du baryum. Le chirp est fixé à 31500 fs<sup>2</sup> pour une largeur spectrale de l'impulsion à mi-hauteur de 9 nm. Lorsque la température croît, l'augmentation de l'épaisseur optique s'accompagne d'une rapide augmentation du contraste des modulations de l'intensité de l'impulsion transmise. Le contraste des modulations et l'amplitude du champ rayonné augmentent avec la densité atomique. Les modulations résultent du battement entre le champ incident, dont la fréquence instantanée varie, et le champ rayonné émis à la fréquence de la transition atomique.

A cause du gradient de température qui existe le long du four, la longueur effective du milieu est plus courte que la longueur du four. Ceci explique les différences qui existent sur les épaisseurs optiques entre les valeurs calculées et les valeurs ajustées. L'ajustement est plus précis pour des fortes valeurs de l'épaisseur optique (14% d'erreur pour  $\alpha_0 L=1400$ , contre 40% pour  $\alpha_0 L=150$ ). En effet, les oscillations très marquées qui apparaissent au fur et à mesure que l'épaisseur augmente, contraignent beaucoup plus l'algorithme des moindres carrés à converger vers une valeur correcte. Ainsi l'erreur qui devient importante dès que les oscillations calculées s'écartent même légèrement des oscillations observées est minimisée. La valeur du chirp est quant à elle de  $\phi_m''|_{fit} = 32900\text{fs}^2$  (soit seulement 4% d'écart par rapport à la valeur attendue).

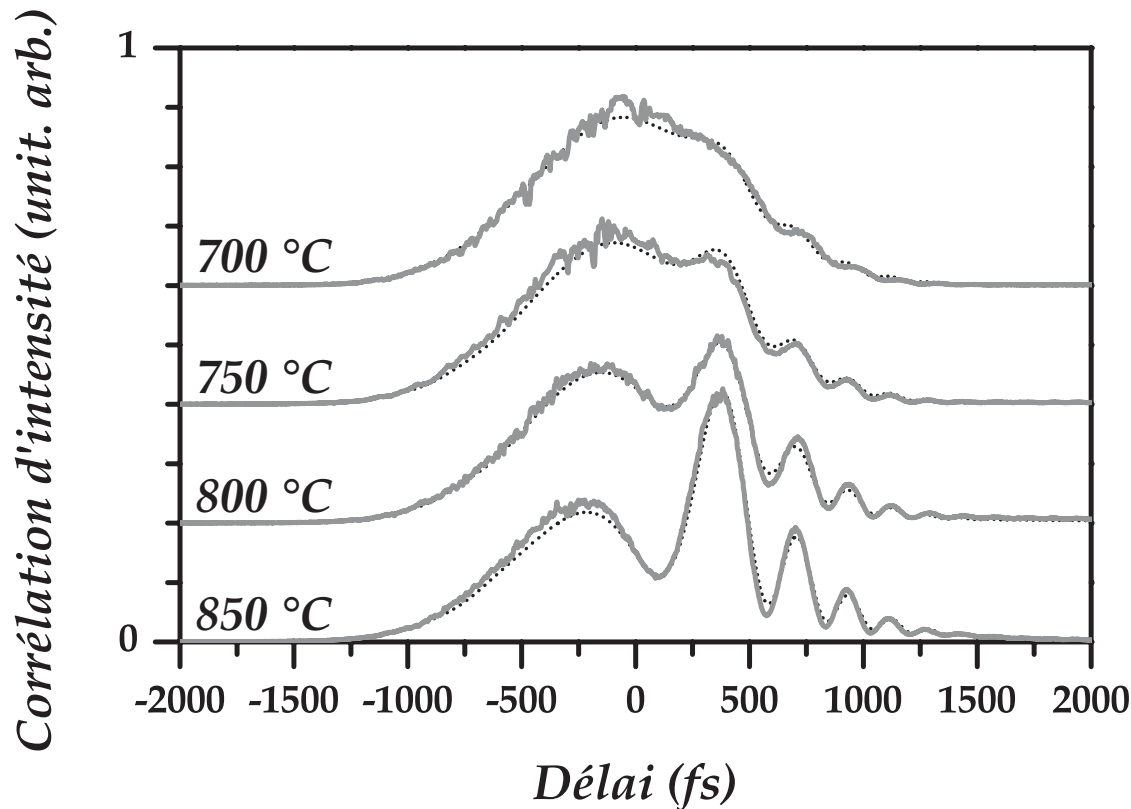


FIG. II.16 – Ajustement des profils de corrélation de la figure II.15 : *En trait continu gris, les signaux de corrélation. En traits pointillés noirs, les ajustements théoriques. Les valeurs de l'épaisseur optique des ajustements sont reportées dans le tableau II.2. Chaque profil est représenté pour la même échelle verticale et décalé verticalement pour une meilleur visibilité.*

#### II.2.2.4.2 Etude avec la longueur d'onde $\lambda_L$

Les résultats obtenus en variant la longueur d'onde d'une impulsion présentant un chirp  $\phi_0'' = \phi_m'' = 31500\text{fs}^2$ , à une température de  $850^\circ\text{C}$  sont représentés sur la figure II.17. Pour les longueurs d'onde extrêmes, l'impulsion n'est pas affectée. Au contraire, au fur et à mesure que  $\lambda_L$  est proche de la résonance  $\Delta = 0$ , l'amplitude des modulations croît

jusqu'à atteindre son maximum à résonance. Enfin, il est important de noter que l'effet dépend non seulement de la valeur mais aussi du signe du désaccord en fréquence : pour  $\Delta \cdot \phi_0'' > 0$  (dans ce cas  $\omega_L < \omega_{21}$ ) les impulsions sont peu affectées et la modification apparaît essentiellement à la fin de l'impulsion. En revanche, pour  $\Delta \cdot \phi_0'' < 0$ , la distorsion survient dès les premières centaines de femtosecondes de l'impulsion (avant le maximum). Ces résultats peuvent s'interpréter de la manière suivante. Rappelons que le contraste des oscillations (équation II.82) est donné par :

$$\frac{K_{\text{res}}(t)}{I_C(0, t)} \propto e^{-\frac{\Delta^2 \tau_0^2}{4}} \cos\left((t - t_X)^2 / \tau_0 \tau_C + \pi/4\right) \quad (\text{II.87})$$

Examinons tout d'abord l'influence du terme  $\exp(-\Delta^2 \tau_0^2 / 4)$  : ce terme est proportionnel à l'amplitude spectrale de l'impulsion à résonance et à la population transférée dans l'état excité. La composante résonante du champ rayonné est maximum quand  $\omega_{21}$  est positionnée sur le maximum du spectre incident. En d'autres termes, le champ rayonné à résonance est d'autant plus faible que le désaccord en fréquence  $\Delta$  est grand. Ainsi le contraste des oscillations diminue quand  $\omega_L$  s'éloigne de la résonance. Ceci explique donc que le contraste des oscillations atteint son maximum à résonance pour ensuite décroître lorsque  $\Delta$  augmente en valeur absolue.

Nous avons vu par ailleurs, que pour  $t < t_X - \sqrt{\phi_0''}$  le champ rayonné est nul (équation II.76). Le champ rayonné s'établit sur l'intervalle  $[t_X - \sqrt{\phi_0''}; t_X + \sqrt{\phi_0''}]$  et pour simplifier nous dirons qu'il est émis quand  $t = t_X$ . Dans le cas  $\phi_0'' > 0$ , puisque  $t_X = \Delta \cdot \phi_0''$ , quand  $\Delta$  varie des valeurs négatives vers les valeurs positives,  $t_X$  (l'instant du début d'émission du champ rayonné) varie de la fin de l'impulsion ( $t > 0$ ) vers le début de l'impulsion ( $t < 0$ ). Ainsi, avec un chirp  $\phi_0'' > 0$ , deux situations pour lesquelles les désaccords sont égaux en valeur absolue mais de signes opposés, génèrent un champ rayonné de même amplitude. En effet si  $\Delta_{\pm}$  est le désaccord en fréquence pour chacun des cas ( $\Delta_+ = -\Delta_- > 0$ ), par exemple  $\lambda_- = 782,1$  nm et  $\lambda_+ = 800,1$  nm sur la figure II.17, on note que :

$$\exp(-\Delta_+^2 \tau_0^2 / 4) = \exp(-\Delta_-^2 \tau_0^2 / 4)$$

En revanche, les instants de passage à résonance sont différents dans les deux cas  $t_{X+} = -t_{X-} > 0$  : le champ rayonné dans le cas  $\Delta_+$  est émis à la fin de l'impulsion et au début dans le cas  $\Delta_-$ . Le recouvrement temporel entre champ rayonné et champ incident est ainsi plus important pour  $\Delta_+$  que pour  $\Delta_-$ , et la modulation d'intensité, qui résulte du battement entre ces deux champs, affecte plus le profil temporel de l'impulsion après propagation. On observe bien expérimentalement ce phénomène pour les couples de longueurs d'onde (782,1 nm ; 800,1 nm) et (786,6 nm ; 795,6 nm). Pour les longueurs d'onde extrêmes présentées ici (777,6 et 804,6 nm), le système est excité si loin de la résonance que le champ rayonné est totalement négligeable ( $\exp(-\Delta^2 \tau_0^2 / 4) \ll 1$ ). La figure II.18 présente de manière schématique les cas  $\Delta < 0$ ,  $\Delta = 0$  et  $\Delta > 0$ , en utilisant la relation temps-fréquence des impulsions chirpées.

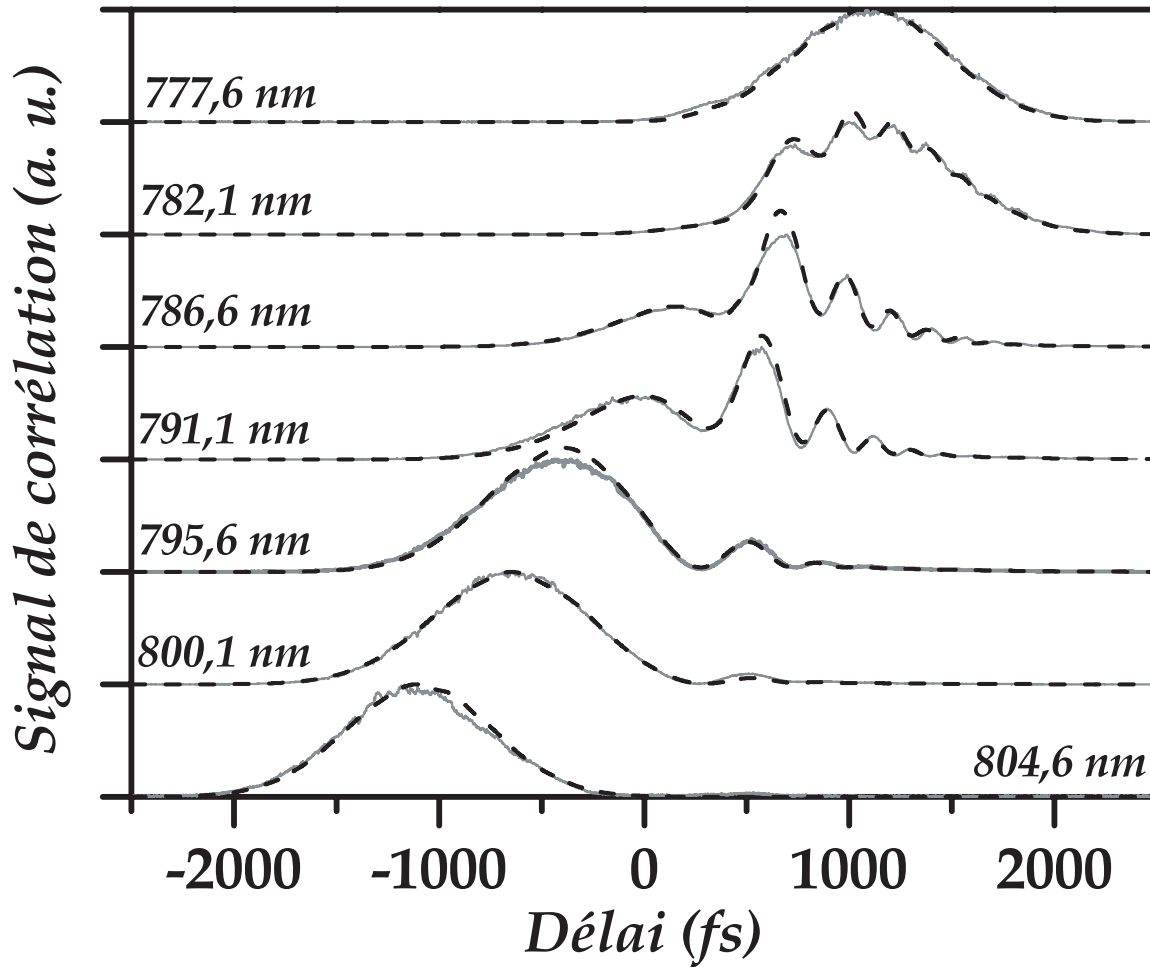


FIG. II.17 – Propagation d’une impulsion à dérive de fréquence dans une vapeur atomique - Evolution en fonction du désaccord en fréquence (Ba,  $T = 850^\circ\text{C}$  ( $\alpha_0 L \simeq 1500$ ),  $\Delta\lambda_{1/2} = 9$  nm et  $\phi''_0 = \phi''_m = 31500\text{fs}^2$ ) : Lorsque l’écart à résonance est important en valeur absolue (777,6 et 804,6 nm) l’impulsion ne présente pas de distorsion. Quand  $\Delta < 0$  (795,6 et 800,1 nm) l’impulsion est peu affectée : la propagation est robuste. En revanche quand  $\Delta > 0$ , l’impulsion présente une distorsion importante même pour des désaccords en fréquence importants qui ne produisent qu’un champ rayonné de très faible amplitude. Cette différence réside dans la position de  $t_X$  qui change avec  $\Delta$ . Les courbes en pointillés sont le résultat de simulations numériques pour des valeurs proches des paramètres expérimentaux indiqués.

**ATTENTION :** Le temps  $t = 0$  des équations est celui qui coïncide avec le maximum d’amplitude des impulsions. Sur la figure II.17, le délai  $t = 0$  (de la table de translation) est pris par rapport à l’expérience réalisée à résonance (791,13 nm). Le décalage observé quand on change la longueur d’onde centrale du laser est dû à la dispersion de délai de groupe du matériau utilisé pour étirer les impulsions, qui modifie le délai de groupe (le "zéro" du maximum) des impulsions. Quand on fera référence au temps  $t$  dans les équations, le délai nul sera donc bien celui du maximum des impulsions et non pas le délai "zéro" expérimental.

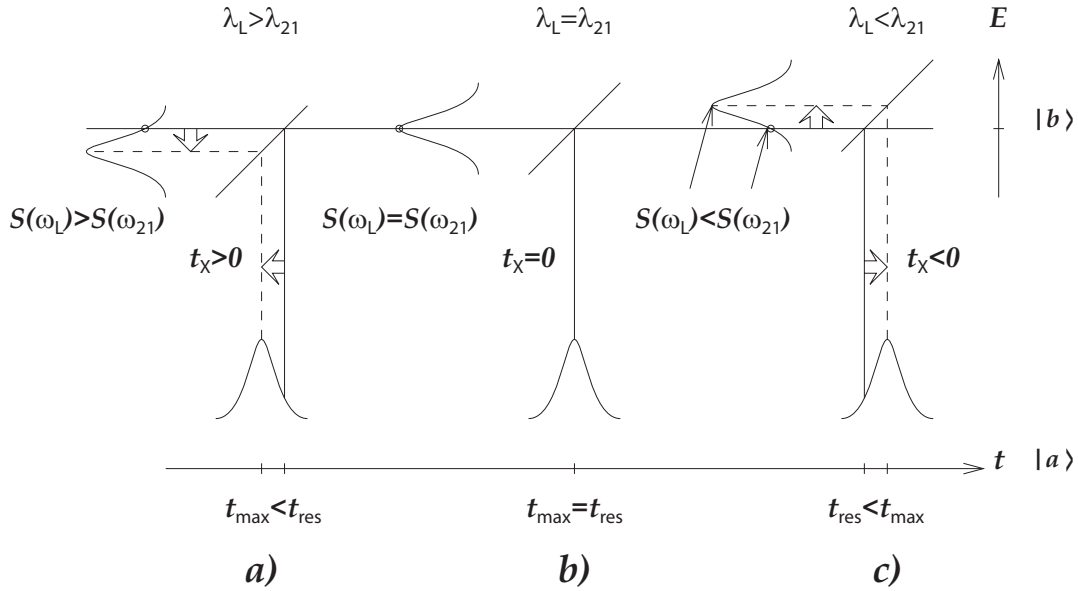


FIG. II.18 – Evolution en fonction du désaccord en fréquence - Interprétation : L'axe horizontal est l'axe des temps, l'axe vertical celui des énergies. De gauche à droite : l'impulsion est a) désaccordée vers le rouge, b) à résonance et c) désaccordée vers le bleu. Dans les trois cas le chirp de l'impulsion est positif (du rouge vers le bleu) et est symbolisé par un segment oblique centré sur le maximum de l'impulsion. Les flèches doubles montrent la position relative du passage à résonance par rapport au maximum de l'impulsion. En fonction de cette position relative et de l'amplitude spectrale à résonance, on obtient un battement entre le champ incident et le champ rayonné qui affecte de manière plus ou moins importante le champ transmis (voir texte).

Voyons maintenant, le rôle du terme  $\cos((t - t_X)^2/\tau_0\tau_C + \pi/4)$  (équation II.80). La phase du battement  $\varphi_B = (t - t_X)^2/\tau_0\tau_C + \pi/4 = \alpha_C t^2 - \Delta t + \varphi_C/2$  entre le champ incident et le champ rayonné, donne la pseudopériode  $T_B$  du battement :

$$T_B = \frac{2\pi}{\omega_B} = \frac{2\pi}{\partial\varphi_B/\partial t} = \frac{2\pi}{2\alpha_C t - \Delta}$$

dont la variation relative est :

$$\frac{1}{T_B} \frac{\partial T_B}{\partial t} = \frac{-2\alpha_C}{2\alpha_C t - \Delta} \quad (\text{II.88})$$

A résonance  $\varphi_B = \alpha_C t^2 - \pi/4$ , la fréquence  $\omega_B$  du battement varie linéairement avec  $t$  et  $T_B$  diminue quand  $t$  augmente. Hors résonance, soit quant  $\Delta\tau_0 \gg 1$  la période des oscillations est pratiquement constante sur la durée  $\tau_C$  des impulsions (sa variation relative est petite devant  $\tau_C^{-1}$ ) et est telle que  $T_B = 2\pi/\Delta$ . La figure II.19 illustre bien cette différence entre  $\Delta = 0$  et  $\Delta \neq 0$ . Dans le cas non résonant (II.19a) les oscillations présentent une allure sinusoïdale de période constante. A résonance (II.19b) la phase des oscillations est quadratique, soit la fréquence varie linéairement dans le temps, pour aller vers des périodes de battement de plus en plus courtes. Dans tous les cas, les échelles de temps de la modulation d'intensité sont dans le domaine THz.

<sup>i</sup> On a  $\frac{1}{T_B} \frac{\partial T_B}{\partial t}(t=0) = \frac{2\alpha_C}{\Delta} \simeq \frac{1}{\tau_C \Delta \cdot \tau_0} \ll \tau_C^{-1}$  mais aussi  $\frac{1}{T_B} \frac{\partial T_B}{\partial t}(t=\tau_C) \simeq -\frac{1/\tau_C}{1-\Delta \cdot \tau_0} \simeq \frac{1}{\tau_C \Delta \cdot \tau_0} \ll \tau_C^{-1}$ . On peut donc en déduire que  $T_B \simeq C^{\text{te}} = T_B(t=0) = -\frac{2\pi}{\Delta} = \frac{2\pi}{|\Delta|}$

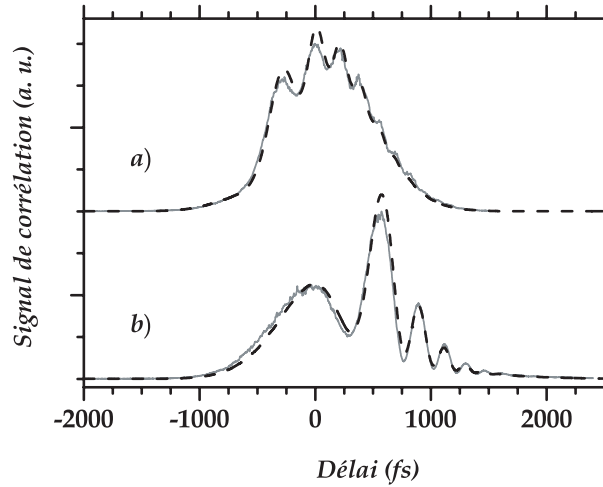


FIG. II.19 – Propagation d’une impulsion à dérive de fréquence dans une vapeur atomique (Ba) - Evolution en fonction du désaccord en fréquence : Le cas a) est obtenu hors résonance et présente une modulation essentiellement sinusoïdale de période constante. A résonance b) ( $\lambda_L = 791,13 \text{ nm}$ ), la modulation d’intensité est une sinusoïde dont la phase temporelle est quadratique.

Nous pouvons faire quelques remarques supplémentaires quant à la phase du battement. Si on considère son expression sous la forme  $\varphi_B = (t - t_X)^2 / \tau_0 \tau_C + \pi/4$ , exceptée la phase à l’origine de  $\pi/4$ , on peut écrire

$$\varphi_B(t) = \int_{t_X}^t (\omega_i(t') - \omega_{21}) dt' \quad (\text{II.89})$$

avec  $\omega_i(t) = \omega_L + 2\alpha_C t$  la fréquence instantanée de l’impulsion à dérive de fréquence. L’intégrale précédente est égale à l’aire  $\mathcal{A}(t)$  du triangle  $IE_1E_2$  balayée par l’impulsion au cours du temps représenté sur II.20.

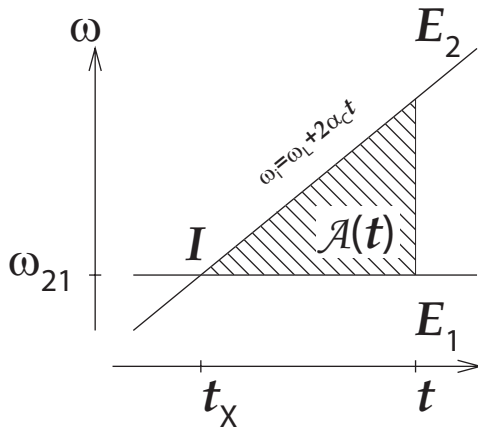


FIG. II.20 – Homothétie temps-fréquence d’une impulsion chirpée : La passage à résonance pour  $t = t_X$  se fait au point  $I$ . Le champ rayonné est émis en  $t_X$ . Un battement se produit entre le champ incident de fréquence variable et le champ rayonné à la fréquence de transition. La phase du battement est donnée par l’aire du triangle hachuré.

### II.2.2.4.3 Variation avec $\phi_0''$

La variation avec  $\phi_0''$  montre une analogie intéressante avec l'équation de Schrödinger d'une particule libre à une dimension. En effet, si on écrit le champ après propagation  $A(L, T) = A_L(T)$ , en faisant apparaître successivement dans le domaine spectral l'impulsion initialement limitée par transformée de Fourier  $\tilde{A}_0(\omega)$ , l'action du chirp et puis l'action de la dispersion résonante  $R(\omega)$ , on obtient

$$A_L(T) = \int_{-\infty}^{+\infty} R(\omega) e^{\frac{i}{2}\phi_0''\omega^2} \tilde{A}_0(\omega) e^{-i\omega T} \frac{d\omega}{2\pi} \quad (\text{II.90})$$

La dérivation partielle de II.90 respectivement par rapport au chirp et par rapport au temps  $T$  (nous avons pris la notation  $T$  pour ne pas confondre avec le temps  $t$  de l'équation de Schrödinger), mène à l'identité :

$$\frac{\partial A_L}{\partial \phi_0''} = -\frac{i}{2} \frac{\partial^2 A_L}{\partial T^2} \quad (\text{II.91})$$

Ceci est formellement identique à l'équation de Schrödinger dépendante du temps de la fonction d'onde  $\psi(x, t)$  d'une particule libre de masse  $m$  ( $\partial^2/\partial x^2$  désigne le laplacien) :

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2}$$

L'analogie revient à remplacer le couple  $(x, t)$  par le couple  $(T, \phi_0'')$ , et la fonction d'onde  $\psi$  par le champ électrique  $A_L(T)$ . Ainsi quand on représente (figure II.21) l'intensité de corrélation en fonction du délai  $T$  et du chirp  $\phi_0''$ , nous obtenons une représentation tridimensionnelle qui peut être vue comme l'évolution de la densité de probabilité d'un paquet d'onde libre unidimensionnel. La densité de probabilité initiale est celle donnée par l'intensité de l'impulsion transmise après propagation d'une impulsion initialement limitée par transformée de Fourier ( $t = 0 \Leftrightarrow \phi_0'' = 0$ ). La phase initiale du paquet d'onde correspond à la phase spectrale introduite par la dispersion résonante  $R(\omega)$ . Quand  $\phi_0''$  augmente, en plus des modulations, on retrouve bien un comportement analogue au phénomène d'étalement du paquet d'onde qui apparaît lors de la propagation de paquet d'onde de matière dans le vide.

On retrouve, comme nous l'avons dit précédemment, le fait qu'à épaisseur optique donnée, le profil temporel d'une impulsion à dérive de fréquence est beaucoup plus sensible aux effets de propagation, qu'une impulsion limitée par transformée de Fourier de spectre équivalent. Nous pouvons noter que l'équation II.91 dérivée à partir de II.90, ne dépend ni de l'expression de  $R(\omega)$ , ni de celle de  $\tilde{A}_0(\omega)$ . L'analogie précédente est donc valable quelle que soit l'impulsion ou le milieu considéré. Ce n'est pas l'étalement de l'impulsion (du "paquet d'onde" équivalent) qui est remarquable, puisqu'une impulsion simplement chirpée (sans dispersion résonante) présente un étalement comparable. Ce qui est remarquable, c'est la présence des oscillations dues à la dispersion résonante. En effet ces oscillations apparaissent uniquement lorsque l'impulsion s'étalement temporellement, alors qu'aucune structure n'est visible pour une impulsion limitée par transformée de Fourier.

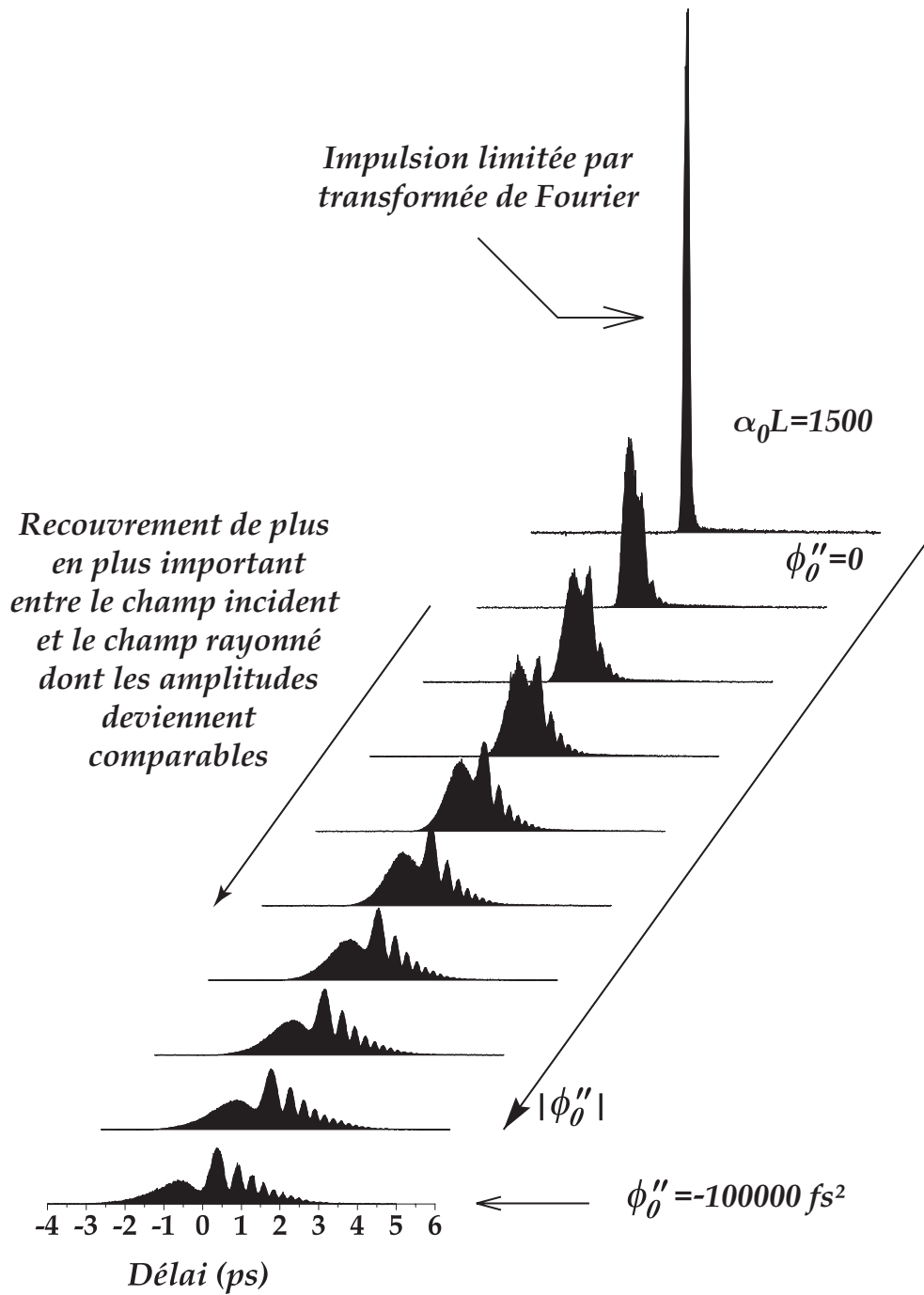


FIG. II.21 – Corrélation d'intensité de l'impulsion transmise - Evolution avec le chirp ( $\epsilon_{\text{disp}} = 9,5 \times 10^{-2}$ ) : La valeur du chirp  $\phi_0''$  est modifiée en changeant la distance  $D_{12}$  entre les réseaux de l'étireur.



### II.2.2.5 Propagation d'impulsion à dérive de fréquence dans une vapeur de sodium

Pour comparaison, nous donnons ici les résultats obtenus par Grischkowsky *et al.* [23,24] sur la propagation d'impulsions à dérive de fréquence dans une vapeur de sodium. Ces expériences ont été obtenues à partir d'impulsions de 5,4 ps issues d'un laser à colorant. Les impulsions sont étirées par propagation dans une fibre optique d'une longueur de 3 m. Après propagation elles ont une durée limitée par transformée de Fourier de l'ordre de 250 fs. Les acquisitions des profils d'intensité sont réalisés par corrélation d'intensité avec une impulsion de 20 fs (continuum recomprimé), qui confère à cette expérience une très grande résolution temporelle. Le résultat principal obtenu par Grischkowsky *et al.* concerne la mesure et la caractérisation de la phase temporelle des impulsions excitatrices à partir de la modulation d'intensité observée sur l'impulsion transmise.

Les résultats que nous avons obtenus dans le rubidium, sont tout à fait transposables à cette situation et n'en diffèrent pas qualitativement. Cependant, les auteurs interprètent la modulation d'intensité comme résultant seulement du battement entre le champ incident et le champ rayonné résonant. Or, comme nous l'avons montré, le champ rayonné comporte également une partie transitoire. Elle s'amortit certes rapidement ( $\approx 250$  fs), mais ne peut en toute rigueur pas être négligée.

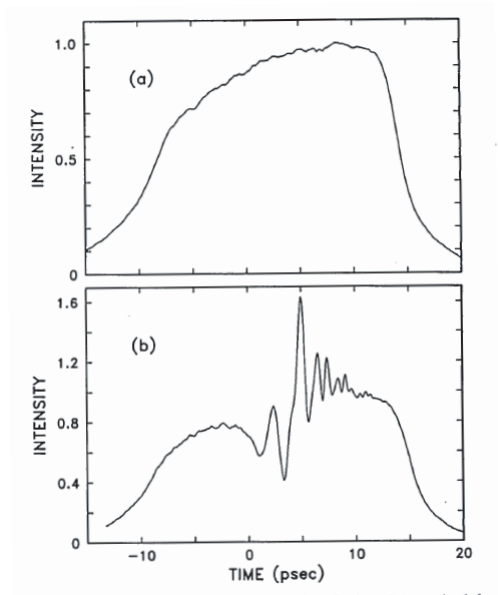


Fig. 6. (a) Measured cross correlation (resolution, 0.4 psec) of the input pulse to the Na cell. (b) Measured cross correlation of the output pulse (solid line) from the Na cell.

FIG. II.22 – Propagation d'impulsions à dérive de fréquence dans une vapeur de sodium. D'après [23]

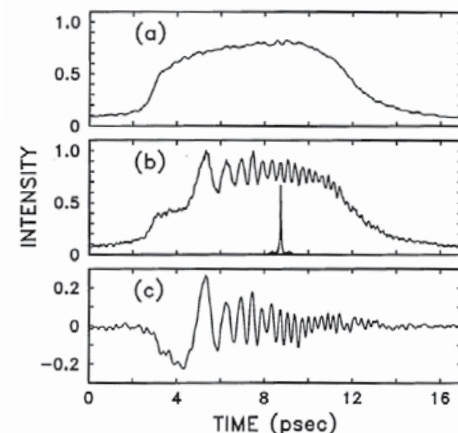


Fig. 2. (a) Measured cross correlation (resolution 22 fsec) of the input pulse to the sodium cell. (b) Measured cross correlation of the output pulse from the sodium cell. The 22-fsec probing pulse's autocorrelation (FWHM of 34 fsec) is also shown. (c) Smoothed difference between the modulated output pulse (b) and the input pulse (a).

FIG. II.23 – Propagation d'impulsions à dérive de fréquence dans une vapeur de sodium. D'après [24]

Ultérieurement, Rothenberg a donné une analyse identique à la notre du phénomène [62], où le rôle des contributions transitoires est analysés en détail. Le cas des milieux denses est également analysé (*cf* figure II.24). Même si l'analyse est de même nature, l'étude expérimentale que nous avons menée en fonction des paramètres du laser, complète ces études pionnières. Par ces études, nous avons en particuliers mis en avant la plus grande sensibilité des impulsions à dérive de fréquences vis-à-vis des phénomènes de propagation. D'autre part, nous avons traité les cas d'impulsions gaussiennes large bande. Ceci à deux conséquences indissociables : premièrement, le système peut être excité même pour des désaccords en fréquence particulièrement grands. En tenant compte de cela et du fait que l'instant de passage à résonance dépend de l'écart en fréquence du laser, on obtient une propriété de robustesse face aux effets de propagation. En effet pour un chirp positif donné, une impulsion désaccordée vers le rouge est moins affectée qu'une impulsion désaccordée vers le bleu de la même quantité. Cette propriété est spécifique aux impulsions gaussiennes (ou plus généralement sans piédestal, ni rebonds) que nous considérons et elle est absente dans les études réalisées par Grischkowsky et Rothenberg (impulsions carrées). Ce phénomène est d'une importance capitale lorsqu'on s'intéresse à la propagation sans distortion.

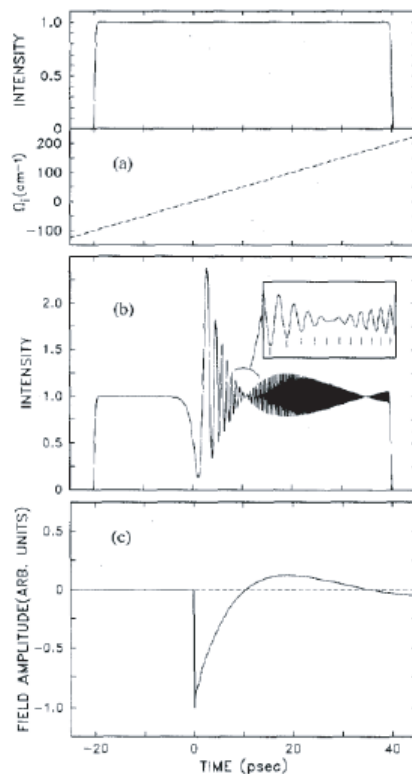


Fig. 3. (a) Input pulse intensity (solid line) and relative instantaneous frequency (dashed line). (b) Calculated output pulse for cell density  $\alpha L = 200$ . Inset shows enlargement of the first node. The phase reversal of  $\mathcal{E}_{rad}$  at the node is indicated by the tick marks switching from the minima to the maxima of the oscillations. (c) " $0\pi$ " behavior of the amplitude of the field radiated by vapor cell of the same density and  $\delta$ -function input pulse.

FIG. II.24 – Propagation d'impulsions à dérive de fréquence dans une vapeur de sodium. D'après [62]

## II.3 Conclusion

Nous avons tout d'abord calculé les quantités atomiques et en particulier la polarisation qui intervient dans les phénomènes de propagation. L'analyse, que nous avons menée dans le cas du système à deux niveaux, peut être étendue aisément à des situations plus complexes qui mettent en jeu plusieurs transitions proches ou bien des transitions multiphotoniques.

Pour des impulsions limitées par transformée de Fourier en champ faible nous avons vu que  $e_{\text{disp}}$  est le paramètre pertinent, qui donne l'importance des effets de propagation. Il donne, à travers  $e_{\text{disp}}/\tau_0$ , le domaine spectral sur lequel agit la dispersion. Quand ce domaine est important, l'impulsion est distordue et présente un profil temporel oscillant. Ce comportement oscillatoire peut également être vu comme la conséquence simultanée de la conservation de l'énergie et du théorème de l'aire. L'énergie (l'aire du carré du champ) est constante alors que l'aire algébrique tend vers zéro, ce qui conduit nécessairement à des oscillations pour vérifier simultanément les deux conditions.

De la même manière, en champ fort c'est le rapport  $e_{\text{disp}}/\theta$  qui donne l'importance relative des effets de propagation. La dépendance de  $e_{\text{disp}}$  avec la densité atomique, implique qu'il est nécessaire qu'un grand nombre d'atomes interagissent avec l'impulsion pour que les effets de propagation se manifestent. Plus  $\theta$  est important plus ce nombre doit être grand. Ainsi même si en théorie la forme temporelle des impulsions intenses n'est pas préservée, en pratique nous sommes presque toujours dans le cas où cette modification est négligeable. L'aire et l'énergie des impulsions intenses sont conservées au cours de la propagation. C'est un résultat important pour la mise en œuvre de processus de contrôle des effets de propagation qui impliquent par exemple l'utilisation d'impulsions intenses.

Nous avons enfin étudié la propagation d'impulsions à dérive de fréquence, situation qui n'est pas décrite par le théorème de McCall&Hahn. Ce problème a déjà été étudié par d'autres auteurs, cependant l'interprétation détaillée et l'étude systématique en fonction des paramètres du laser que nous avons menées, nous ont permis de mettre en avant plusieurs phénomènes qui par analogie nous serviront au chapitre IV. Il existe dans ce problème deux types d'interférences. Tout d'abord, le champ rayonné présente des interférences temporelles au niveau atomique entre les composantes excitées à résonance et hors résonance. Ensuite le profil temporel du champ transmis est la conséquence du battement entre le champ rayonné et le champ incident. Par rapport à l'excitation en régime d'impulsion picoseconde, le champ rayonné comporte une partie transitoire en plus de la partie résonante qui produit l'hétérodynage (battement). Même si elle n'a qu'un rôle limité dans le cas précis que nous avons étudié, on peut imaginer que la contribution transitoire est susceptible de jouer un rôle non négligeable dans d'autres situations où l'aspect dynamique est important. Par ailleurs, une impulsion à dérive de fréquence est, à épaisseur optique donnée, beaucoup plus sensible aux effets de propagation qu'une impulsion limitée par transformée de Fourier de même spectre (en intensité). L'étude du phénomène en fonction de la longueur d'onde a également révélé que la modulation d'intensité de l'impulsion transmise présente en particulier deux situations extrêmes. Dans le cas où l'impulsion est résonante, la modulation d'intensité présente des oscillations quadratiques. D'un autre côté, quand  $\Delta \cdot \phi_0'' > 0$  cette oscillation est sinusoïdale.

La génération d'impulsion THz à dérive de fréquence à l'aide d'antennes semiconductrices ou par redressement optique, utilise par exemple le battement entre deux impulsions infrarouges à dérive de fréquence [63]. Dans ce cas, il est absolument nécessaire d'avoir une stabilité interférométrique du délai entre les deux impulsions. On peut imaginer tirer profit des effets de propagation et de l'auto-hétérodynage qui se produit pour les impulsions à dérive de fréquence. En effet, les impulsions après propagation présentent une modulation d'intensité facilement contrôlable. Cette modulation est analogue à celle obtenue en réalisant le battement entre deux impulsions infrarouges excepté que le contrôle interférométrique n'est plus nécessaire puisque assuré automatiquement par le processus d'interaction (auto-hétérodynage).

La transposition des résultats que nous avons établis ici, au cas des impulsions à dérive de fréquence en champ fort n'est pas immédiate. L'étude des impulsions intenses fortement étirées avec  $\phi_0'' \gg \tau_0^2$  et  $\Omega\tau_0 \gg 1$ , fait apparaître des phénomènes tels que le passage adiabatique (AP Adiabatic Passage) dans un système à deux niveaux ou le STIRAP (Stimulated Raman Adiabatic Passage) dans un système à trois niveaux [17,64]. Dans un système à deux niveaux, on s'attend du fait du passage adiabatique à l'apparition du dipôle transitoire très localisé dans le temps par rapport à la durée de l'impulsion. Dans ces conditions, il semble raisonnable de penser que la déformation de l'impulsion sera faible. Un programme pour réaliser des simulations numériques est en cours de réalisation pour vérifier cette idée.

## Chapitre III

# COMPENSATION DE LA DISPERSION RÉSONANTE

La manipulation de la forme temporelle des impulsions courtes est devenue un élément important dans l'étude de l'interaction entre la lumière et la matière. Elle est également un paramètre clé dans la recherche de méthodes de production d'impulsions de plus en plus courtes (*e.g.* NOPA Noncollinear Optical Parametric Amplifier).

Lorsque les impulsions courtes se propagent dans un milieu dispersif, elles sont en général étirées, voire distordues [65]. Dans le domaine temporel, elles perdent ainsi leurs caractéristiques d'amplitude et de phase initiale. Dans le cas d'un milieu purement dispersif, l'effet se concentre uniquement sur une variation de la phase spectrale des impulsions due à la phase  $\phi(\omega)$  introduite par le milieu. Pour des fréquences laser éloignées de toutes les résonances, le milieu est transparent et  $\phi(\omega)$  est une fonction lentement variable qui peut être remplacée par son développement de Taylor au voisinage de la fréquence centrale du laser. Les dérivées première et seconde, qui apparaissent comme coefficients du développement, correspondent respectivement au délai de groupe (GD : Group Delay) et à la dispersion de délai de groupe (GDD : Group Delay Dispersion) responsable de la dérive de fréquence et de l'étirement temporel des impulsions. La compensation de ces effets peut être facilement réalisée par des dispositifs simples : les dispositifs à prismes, ou à réseaux, ou bien les miroirs chirpés <sup>a</sup> [66, 67] qui présentent une GDD de signe opposé sont utilisés pour compenser la dispersion au deuxième et troisième ordre. La compensation des ordres les plus bas de  $\phi(\omega)$  est dans la plupart des cas suffisante.

D'un autre côté, lorsqu'une impulsion se propage dans un milieu dont les résonances se situent dans son domaine spectral, elle subit une distorsion importante. Au voisinage d'une telle résonance la phase accumulée au cours de la propagation est donnée par :

$$\phi_{\text{disp}}(\omega) \simeq -\frac{\alpha_0 L \Delta_d}{\omega - \omega_{21}} \quad (\text{III.1})$$

où  $\alpha_0$  est le coefficient d'absorption à résonance,  $L$  la longueur du milieu traversé,  $\Delta_d$  la largeur Doppler de la transition et  $\omega_{21}$  la pulsation de la transition.

---

<sup>a</sup> Il s'agit de miroirs constitués d'un empilement de couches diélectriques dont les indices et les épaisseurs sont choisis et confèrent à l'ensemble une GDD négative.

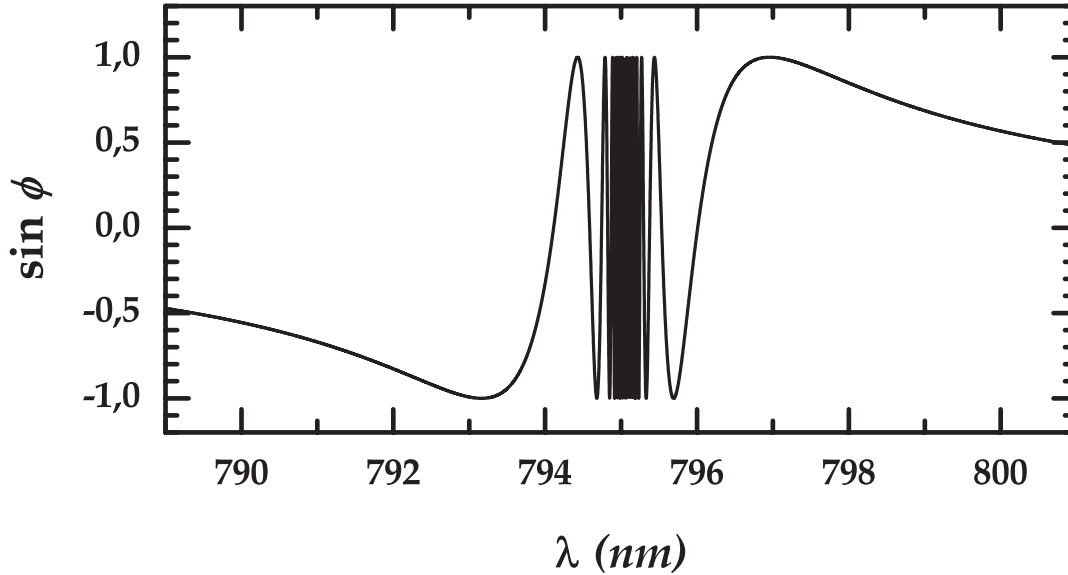


FIG. III.1 – Sinus de la phase introduite par la dispersion résonante (transition  $5s\ ^2S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 5p\ ^2P_{\frac{1}{2}}$  à 794,76 nm du rubidium,  $\alpha_0 L = 18750$ ) : La phase  $\phi_{disp}$  varie rapidement au voisinage de la résonance et son sinus présente des oscillations de plus en plus resserrées.

Cette phase varie rapidement (figure III.1) et on ne peut pas l'approximer par son développement de Taylor autour de  $\omega_{21}$  en se limitant aux ordres les plus bas. Un dispositif classique, tel qu'une paire de réseaux ou prismes ne permettent d'introduire que des phases quadratiques et cubiques, ne peuvent donc pas compenser la phase due à la dispersion résonante. Pour preuve, nous avons vu dans le chapitre II, que l'interaction d'une impulsion chirpée avec un milieu résonant produit une grande distorsion. Les ordres supérieurs du développement de Taylor ont donc un rôle très important. Ainsi l'utilisation d'un étireur/compresseur est à proscrire lorsque que l'on veut compenser les effets de propagation dus à la dispersion résonante. Afin d'accéder à des mises en forme complexes, on est alors tenu d'utiliser un dispositif de mise en forme procurant plus de degrés de liberté qu'une simple phase quadratique et cubique.

Dans ce chapitre, nous allons montrer que l'on peut compenser la dispersion résonante introduite par un milieu atomique, avec un dispositif de mise en forme pixellisé (SLM *Spatial Light Modulator* 640 pixels) haute résolution 0,06nm/pixel à 800 nm. Dans un premier temps, nous présentons le principe d'une expérience de compensation. Nous verrons que les résultats expérimentaux sur les profils temporels d'intensité et les traces XFROG des impulsions compensées, obtenues par une méthode de compensation directe simple et efficace, sont particulièrement satisfaisants. Nous examinerons les impulsions dans le domaine spectral, ce qui va permettre de comprendre l'origine des limitations de cette technique et dont nous verrons une alternative.

### III.1 Principe de la compensation

Le principe d'une expérience de compensation schématisée par la figure III.2, est le suivant : une impulsion ultracourte et limitée par transformée de Fourier donnée par :

$$\mathcal{E}(t) = \underline{A}_0 \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_0^2}\right) e^{-i\omega_L t}$$

interagit avec un système purement dispersif caractérisé par sa réponse spectrale  $R(\omega) = e^{i\phi_{\text{disp}}(\omega)}$ . Après interaction, les caractéristiques initiales de l'impulsion sont altérées. L'impulsion après propagation est donnée par

$$\mathcal{E}_d(t) = \mathcal{F}^{-1}[\mathcal{E}(\omega)R(\omega)]$$

Pour restaurer les propriétés de l'impulsion, on utilise un dispositif de mise en forme de transmittance spectrale  $T(\omega) = e^{i\phi_{SLM}(\omega)}$ . L'impulsion après propagation dans le milieu puis le façonneur d'impulsions est alors donnée par

$$\mathcal{E}_c(t) = \mathcal{F}^{-1}[\mathcal{E}(\omega)R(\omega)T(\omega)] = \mathcal{F}^{-1}\left[\mathcal{E}(\omega)e^{i(\phi_{\text{disp}}+\phi_{SLM})}\right]$$

La compensation  $\mathcal{E}_c(t) = \mathcal{E}(t)$ , c'est-à-dire la restitution de l'impulsion de départ, a lieu quand  $T(\omega) = R^{-1}(\omega) = R^*(\omega)$ . Cette condition impose que  $\phi_{SLM} = -\phi_{\text{disp}}$  et le façonneur d'impulsions doit introduire une conjugaison de phase. Comme le milieu est purement dispersif et que le système de mise en forme n'agit que sur la phase des impulsions, on dispose alors de deux approches équivalentes car les réponses sont linéaires. En effet, l'ordre dans lequel on applique  $R(\omega)$  et  $T(\omega)$  est sans importance. On peut donc se propager dans le milieu et compenser l'impulsion *a posteriori*. L'autre possibilité consiste à précompenser l'impulsion avec le façonneur d'impulsions, puis propager l'impulsion dans le milieu dispersif. C'est cette dernière approche que nous utilisons.

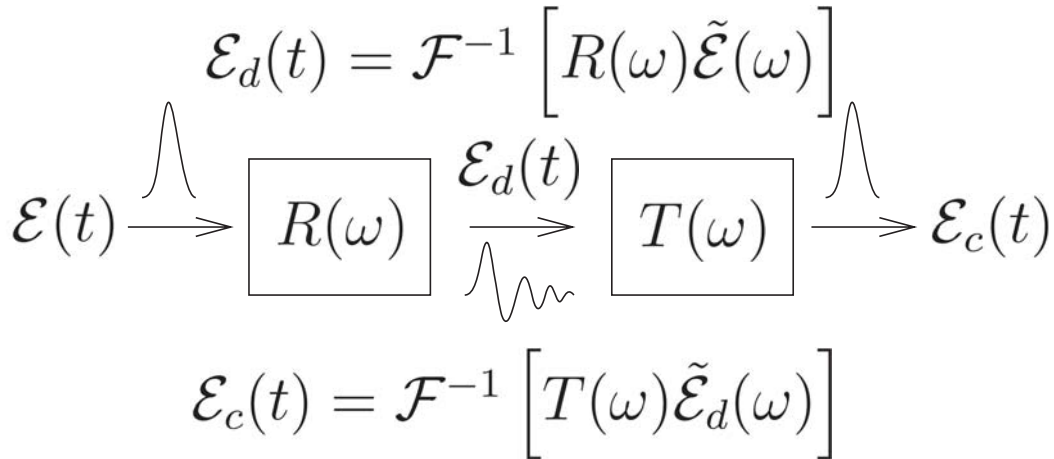


FIG. III.2 – Etapes d'une expérience de compensation : L'impulsion initiale  $\mathcal{E}(t)$  est décrite après propagation par  $\mathcal{E}_d(t)$  qui résulte de l'action du milieu caractérisé par sa réponse spectrale  $R(\omega)$ . L'impulsion  $\mathcal{E}_c(t)$  résulte de l'action du masque de transmittance spectrale  $T(\omega)$ . La compensation a lieu si  $T(\omega) = R^{-1}(\omega) = R^*(\omega)$ , on a alors  $\mathcal{E}_c(t) = \mathcal{E}(t)$ .

## III.2 Expérience

Pour étudier la compensation de la dispersion résonante, nous utilisons les impulsions issues de l'oscillateur Ti:Saphir décrite au chapitre I. Dans cette expérience l'oscillateur délivre des impulsions de 175 fs à mi-hauteur en intensité correspondant à une largeur spectrale de 9,7 nm. La longueur d'onde centrale est accordée sur la transition  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$  à 794,76 nm du rubidium. Une fraction du faisceau est prélevée pour servir de référence à la corrélation d'intensité. Le faisceau principal est envoyé successivement dans le façonneur d'impulsions puis dans la vapeur atomique à l'intérieur du four. La vapeur est produite en portant le four à 160°C. A cette température la pression partielle de rubidium est de  $7,9 \cdot 10^{-3}$  mbar dans de l'argon à 20 mbar utilisé comme gaz tampon. Le profil temporel de l'impulsion transmise après le four est mesuré par corrélation d'intensité avec l'impulsion de référence. Nous utilisons également un spectromètre de résolution 0,1 nm pour mesurer les spectres des impulsions infrarouges.

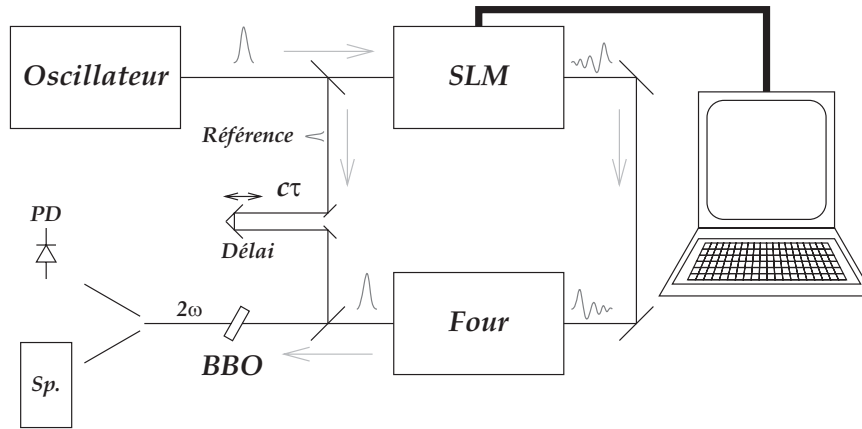


FIG. III.3 – Dispositif expérimental de compensation de la dispersion résonante : L'oscillateur délivre des impulsions de 175 fs à environ 794,7 nm. Une partie des impulsions est utilisée comme référence pour mesurer par mélange avec les impulsions compensées dans un cristal doubleur (BBO), soit la corrélation d'intensité avec la photodiode (PD) ou bien la trace XFROG avec le spectromètre (Sp). Le façonneur d'impulsions (SLM) est programmé pour introduire une phase spectrale  $\phi_{SLM}$  de type dispersion résonante (changé de signe).

Le dispositif de commande du façonneur d'impulsions ne fonctionne pas en boucle fermée et la détermination de l'épaisseur de compensation n'est pas automatisée. La phase spectrale introduite par le système de mise en forme est donnée par

$$\phi_{SLM} = \frac{e_{SLM} \Delta_d}{\omega - \omega_{21}} \quad (\text{III.2})$$

où  $e_{SLM}$  est la valeur de l'épaisseur optique programmée. La compensation optimale est réalisée quand la distortion du profil de corrélation est minimale; cette situation ne correspond pas strictement à  $e_{SLM} = \alpha_0 L$  à cause des limitations du dispositif dont nous examinerons l'effet plus loin dans ce chapitre. Afin de déterminer la valeur la plus proche



de l'épaisseur de compensation optimale qui correspond à la distorsion minimale, nous utilisons une méthode quoique grossière mais efficace et qui démontre la faisabilité de la technique. Nous procédons de la manière suivante :

- i) le profil temporel de l'impulsion à restituer est mesuré par corrélation d'intensité. Elle est obtenue à température ambiante et avec une tension nulle sur tous les pixels du SLM et sa durée est de 250 fs (mi-hauteur de la corrélation). Cette durée s'explique par le chirp  $\phi_0''$  accumulé sur le trajet optique entre l'oscillateur, le SLM et le four. Elle diffère de l'impulsion de référence issue de l'oscillateur.
- ii) le four est porté à une température  $T$  donnée et on acquiert le profil temporel de l'impulsion déformée (on peut estimer la valeur  $\alpha_0 L$  de l'épaisseur optique du milieu),
- iii) on programme le SLM à une valeur proche de l'épaisseur optique théorique pour  $T$  donnée (ou utiliser la valeur estimée en ii),
- iv) on répète l'opération iii en changeant l'épaisseur optique programmée jusqu'à obtenir la compensation optimale, *i.e.* un profil proche de celui obtenu en i),
- v) une fois la meilleure compensation obtenue, on mesure le profil temporel correspondant,
- vi) on laisse refroidir le four et on mesure le profil temporel issu du système de mise en forme seul, qui introduit la phase spectrale  $\phi_{SLM}$  correspondant à la valeur  $e_{SLM}$  optimale.

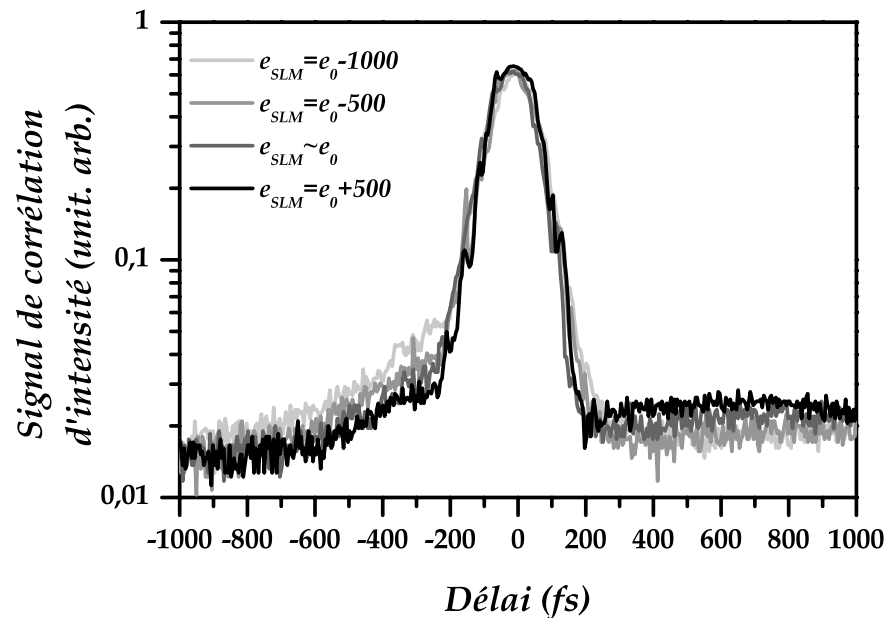


FIG. III.4 – Détermination de l'épaisseur optique de compensation optimale : *Le piédestal se déplace des délais négatifs (causal) vers le délai positif suivant que l'impulsion est sous-compensée ou sur-compensée. Ici  $e_0 = 18750$ .*

Le détail des étapes iii à v est présenté sur la figure III.4. L'incrément sur la valeur de l'épaisseur optique programmée est de 500, autour de la valeur estimée par la mesure du profil de l'impulsion après interaction avec la vapeur seule. Le fait de procéder à la compensation directe de l'impulsion permet d'estimer la sensibilité de cette méthode. En effet nous sommes capables de discriminer facilement des profils temporels qui diffèrent de  $\pm 500$  par rapport à l'épaisseur optique optimale de compensation  $e_0$  (figure III.4).

Nous remarquons que même en variant continûment et de façon fine la valeur de  $e_{SLM}$ , nous ne parvenons jamais à obtenir l'impulsion d'origine. La phase spectrale introduite par le dispositif de mise en forme ne peut pas annuler rigoureusement la phase due à la dispersion résonante. Afin d'estimer la phase des impulsions transmises, il est nécessaire de caractériser ces impulsions. Pour cela nous utilisons le méthode XFROG (*cf* chapitre I). L'acquisition des traces XFROG se fait en substituant la photodiode, par un spectromètre à fibre (OceanOptics) qui collecte le signal somme de fréquence provenant du cristal de BBO (1 mm).

### III.3 Résultats expérimentaux

Pour estimer la qualité de la compensation, on procède à l'acquisition des profils temporels et spectraux, que l'on compare à une impulsion de référence. La mesure de l'épaisseur optique étant à la fois un point crucial et difficile de l'expérience, on procède également à la mesure des profils temporels des impulsions délivrées par le système de mise en forme qui sont comparées aux profils obtenus après interaction avec la vapeur atomique seule.

#### III.3.1 Résultats sur le profil temporel d'intensité

Une fois l'épaisseur optique de compensation déterminée, nous procédons à une étude plus détaillée des profils temporels de l'impulsion, au cours des différentes étapes du processus de façonnage à travers les différents éléments du montage. La figure III.5 montre en trait continu, le comportement temporel de la corrélation d'intensité de l'impulsion dans trois situations : a) la vapeur atomique agit seule sur l'impulsion incidente, le système de mise en forme n'est pas actif et aucune compensation de phase n'est introduite.

$$\phi_{\text{disp}} = -\frac{\alpha_0 L \Delta_d}{\omega - \omega_{21}} \quad \text{et} \quad \phi_{SLM} = 0$$

L'impulsion transmise montre les oscillations dues à la dispersion résonante dans la vapeur atomique d'épaisseur optique  $\alpha_0 L \simeq 21500$ . En b) le SLM agit seul, on a

$$\phi_{\text{disp}} = 0 \quad \text{et} \quad \phi_{SLM} = \frac{e_{SLM} \Delta_d}{\omega - \omega_{21}}$$

**NB** :  $\phi_{SLM}$  est la phase spectrale programmée, c'est-à-dire celle que l'on souhaite introduire à l'aide du dispositif. Comme on le verra dans la partie III.4, l'action du dispositif se traduit du fait de ses limitations, par une phase réellement introduite qui diffère de la phase programmée à laquelle s'ajoute une modification du spectre de l'impulsion.

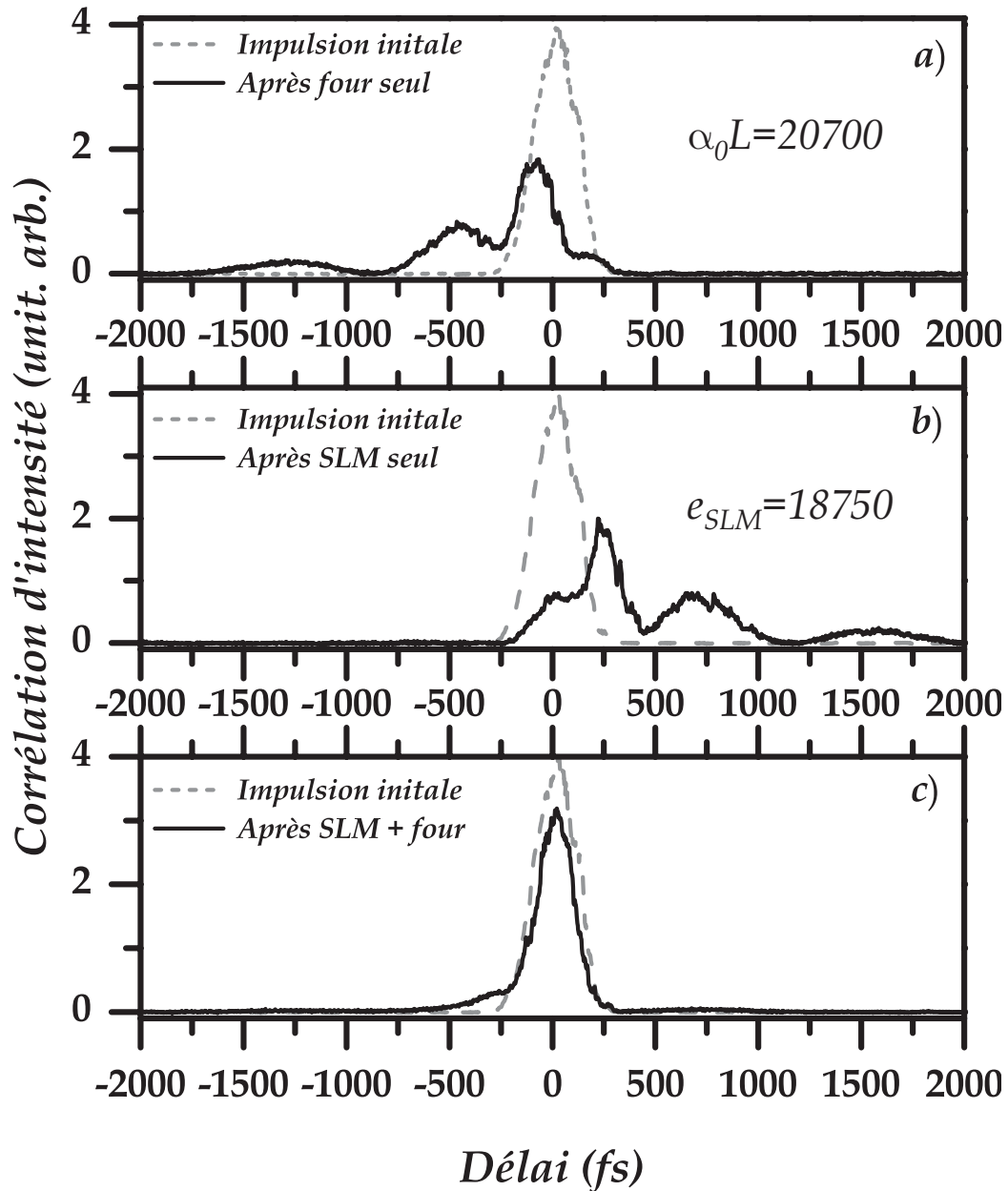


FIG. III.5 – Profils temporels de corrélation d'intensité : En a) les pixels du SLM sont portés à une tension constante qui correspond à un déphasage nul. La dispersion résonante introduit une distorsion sur le profil temporel de l'impulsion incidente. En b), le façonneur d'impulsions est programmé de sorte à introduire une phase opposée à la phase spectrale de la dispersion résonante. Le four est à température ambiante, la densité de vapeur atomique est négligeable et n'introduit aucune phase. Dans le cas idéal, les courbes a) et b) sont images l'une par rapport à l'autre par renversement du temps car  $\phi_{SLM}(\omega) = -\phi_{disp}(\omega)$ . En c) le four et le SLM sont combinés et les phases spectrales des deux systèmes se compensent. On obtient une impulsion courte très faiblement distordue.

Par comparaison avec le cas a), la phase spectrale programmée ( $e_{SLM} = 18750$ ) produit une impulsion dont le profil temporel est renversé dans le temps du fait de la conjugaison de phase introduite par le SLM <sup>b</sup>. En c), l'impulsion se propage consécutivement dans le système de mise en forme puis dans la vapeur atomique. Les effets de dispersion  $\phi_{disp} + \phi_{SLM}$  sont minimisés et la distorsion de l'impulsion transmise est fortement réduite. Dans les trois cas de figure, nous avons représenté en pointillés l'impulsion initiale, c'est-à-dire en l'absence de vapeur atomique et de phase dans le SLM. La durée à mi-hauteur du signal de corrélation de cette impulsion est de 250 fs supérieure à la durée de 124 fs de l'impulsion limitée par transformée de Fourier ( $\tau_0 \simeq 75$  fs). Cela indique la présence d'une phase spectrale additionnelle, principalement due à un chirp (évalué ultérieurement dans la partie III.3.2 à environ 4890 fs<sup>2</sup>) qui est introduit au cours de la propagation à travers les nombreux éléments optiques qui constituent le montage expérimental. Par comparaison avec cette impulsion initiale, l'impulsion compensée est sensiblement aussi courte temporellement et présente très peu de distorsion. Nous pouvons cependant noter la présence d'un piédestal autour de -300 fs ainsi qu'un pic secondaire à 750 fs. L'intensité maximale de l'impulsion restaurée est atténuée de 26%, tandis que l'énergie totale de l'impulsion est peu modifiée (< 7%). Ceci montre que les impulsions restaurées possèdent toujours une fraction de leur énergie qui est dispersée dans le temps, à des durées plus ou moins grandes par rapport à la durée des impulsions initiales.

La bonne qualité de la compensation est également confirmée par l'analyse de la représentation du signal de corrélation  $I_S(\tau)$  de l'impulsion compensée en fonction du signal de corrélation  $I_E(\tau)$  de l'impulsion initiale. On définit alors une trajectoire paramétrée par le délai  $\tau$ . Dans cette représentation, chaque point  $P(\tau)$  est défini par ses coordonnées  $(x(\tau), y(\tau)) = (I_E(\tau), I_S(\tau))$ . Une compensation idéale se traduit par l'égalité des profils temporels  $I_E(\tau) = I_S(\tau)$  et correspond à une droite de pente unité. Un ajustement linéaire (par moindres carrés) sur le nuage de points donne une pente de  $a = 0,74$  et un coefficient de corrélation <sup>c</sup>  $\rho = 0,987$ . La valeur de  $\rho$  proche de 1 signifie que, dans l'ensemble, le signal après compensation reproduit bien la forme temporelle du signal initial et de plus sans introduire de délai supplémentaire; mais la pente  $a < 1$ , indique qu'il est atténué d'environ 26% en intensité. Lorsque les points s'éloignent de la droite d'ajustement (représentée en gris sur la figure III.6), cela traduit des imperfections dans la forme temporelle obtenue. De tels points situés au voisinage du zéro en intensité et au-dessus de la droite, correspondent à des rebonds temporels, situés dans les ailes de l'impulsion (loin du maximum). Au contraire, des points situés près des valeurs élevées du signal de corrélation et en dessous de la droite d'ajustement, correspondent à des "accidents" (de type trous) dans le profil temporel.

---

<sup>b</sup> La conjugaison de phase  $\phi \rightarrow -\phi$  revient à prendre la transformée de Fourier du spectre conjugué  $\mathcal{E}(\omega) \rightarrow \mathcal{E}^*(\omega)$ , ce qui se traduit pour un champ réel par un renversement du temps  $\mathcal{E}(t) \rightarrow \mathcal{E}(-t)$

<sup>c</sup> Le coefficient de corrélation de deux variables  $X$  et  $Y$  est défini comme  $\rho(X, Y) = \text{cov}(X, Y) / \sigma_X \sigma_Y$  où la covariance  $\text{cov}(X, Y) = \langle XY \rangle - \langle X \rangle \langle Y \rangle$  et l'écart type  $\sigma_X = \sqrt{\langle X^2 \rangle - \langle X \rangle^2}$ .  $\langle X \rangle$  désigne la valeur moyenne de  $X$ . Ici on a  $X = I_E(\tau)$  et  $Y = I_S(\tau)$

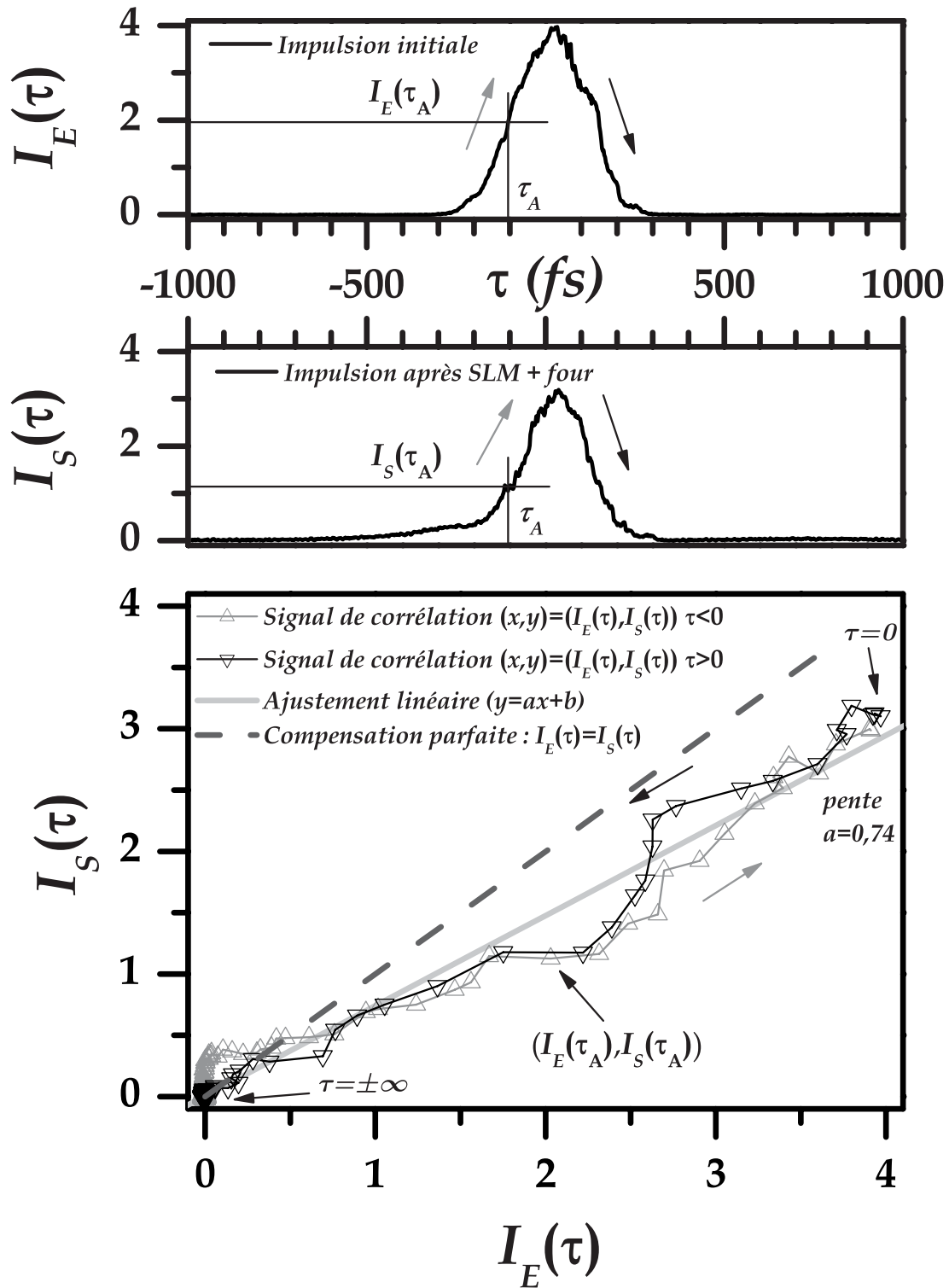


FIG. III.6 – Construction et ajustement linéaire du nuage de points  $(I_E(\tau), I_S(\tau))$  : La partie de trajectoire correspondant au front montant des impulsions est représentée en gris. Le front descendant est représenté en noir.

### III.3.2 Ajustements théoriques

Les courbes expérimentales sont reproduites avec un excellent accord par des courbes théoriques, dont les paramètres sont déterminés par une méthode d'ajustement des moindres carrés usuelle (figure III.7). Nous exposons ici la méthode que nous avons utilisé pour réaliser l'ajustement théorique des profils temporels expérimentaux.

- 1) A partir du spectre en intensité  $S(\omega) \propto \exp(-\omega^2\tau_0^2/2)$  de la référence, nous déterminons la durée  $\tau_0$  limitée par transformée de Fourier.
- 2) En utilisant cette valeur de  $\tau_0$ , et à partir du signal de corrélation d'intensité de l'impulsion initiale  $C_{\varepsilon_1, \varepsilon_1}^{(2)}(\tau) \propto \exp(-2\tau^2/(\tau_0^2 + \tau_C^2)) = \exp(-2\tau^2/(\tau_0^2 + 4\phi_0''^2/\tau_0^2))$ , nous pouvons extraire la valeur du chirp  $\phi_0''$  introduit par les éléments optiques. Il est essentiellement présent sur l'impulsion initiale (la référence est pratiquement limitée par transformée de Fourier).
- 3) On utilise le signal de corrélation issu du four lorsque seule la vapeur atomique affecte l'impulsion. L'ajustement théorique de ce signal (figure III.7-a) permet d'obtenir :
  - la longueur d'onde centrale du laser  $\lambda_L$ ,
  - l'épaisseur optique  $\alpha_0 L|_{\text{fit}}$  du milieu traversé.
- 4) On utilise le signal de corrélation provenant du SLM seul, dans lequel on a programmé la phase  $\phi_{SLM}$ . L'ajustement théorique de ce signal (figure III.7-b) permet d'obtenir :
  - l'épaisseur optique  $e_{SLM}|_{\text{fit}}$  réellement introduite par le dispositif,
  - $\lambda_{SLM}$  la longueur d'onde centrale de fonctionnement du SLM (qui peut différer de quelques fractions de nanomètres de  $\lambda_L$  et de la longueur d'onde de la transition),
  - la largeur et l'amplitude du trou spectral qui apparaît à cause des limitations intrinsèques du dispositif de mise en forme (cf III.4). Ce trou est modélisé par une gaussienne renversée.
- 5) L'ajustement de la courbe III.7-c est obtenu en imposant, dans le calcul de la propagation à travers le SLM et le four, tous les paramètres avec leurs valeurs déterminées précédemment.

La durée de 250 fs (FWHM) de l'impulsion issue du SLM est supérieure à la durée limitée par transformée de Fourier de 124 fs (FWHM) déterminée par la méthode précédente. Cette durée correspond à un chirp de 4890 fs<sup>2</sup>. Nous obtenons une épaisseur optique de  $\alpha_0 L|_{\text{fit}} = 21000$  (III.7-a), en bon accord avec la valeur de l'épaisseur optique de  $\alpha_0 L|_{\text{théo}} = 20700$  qui correspond à la température du four ( $T = 160^\circ\text{C}$ ). Par ailleurs la valeur  $e_{SLM}|_{\text{fit}} = 19200$  est en accord avec la valeur programmée  $e_{SLM} = 18750$ . Soulignons la précision des paramètres d'ajustement déterminés indépendamment et qui une fois combinés permettent de décrire en détail l'impulsion compensée ainsi que les défauts présents autour du pic central (figure III.7-c).

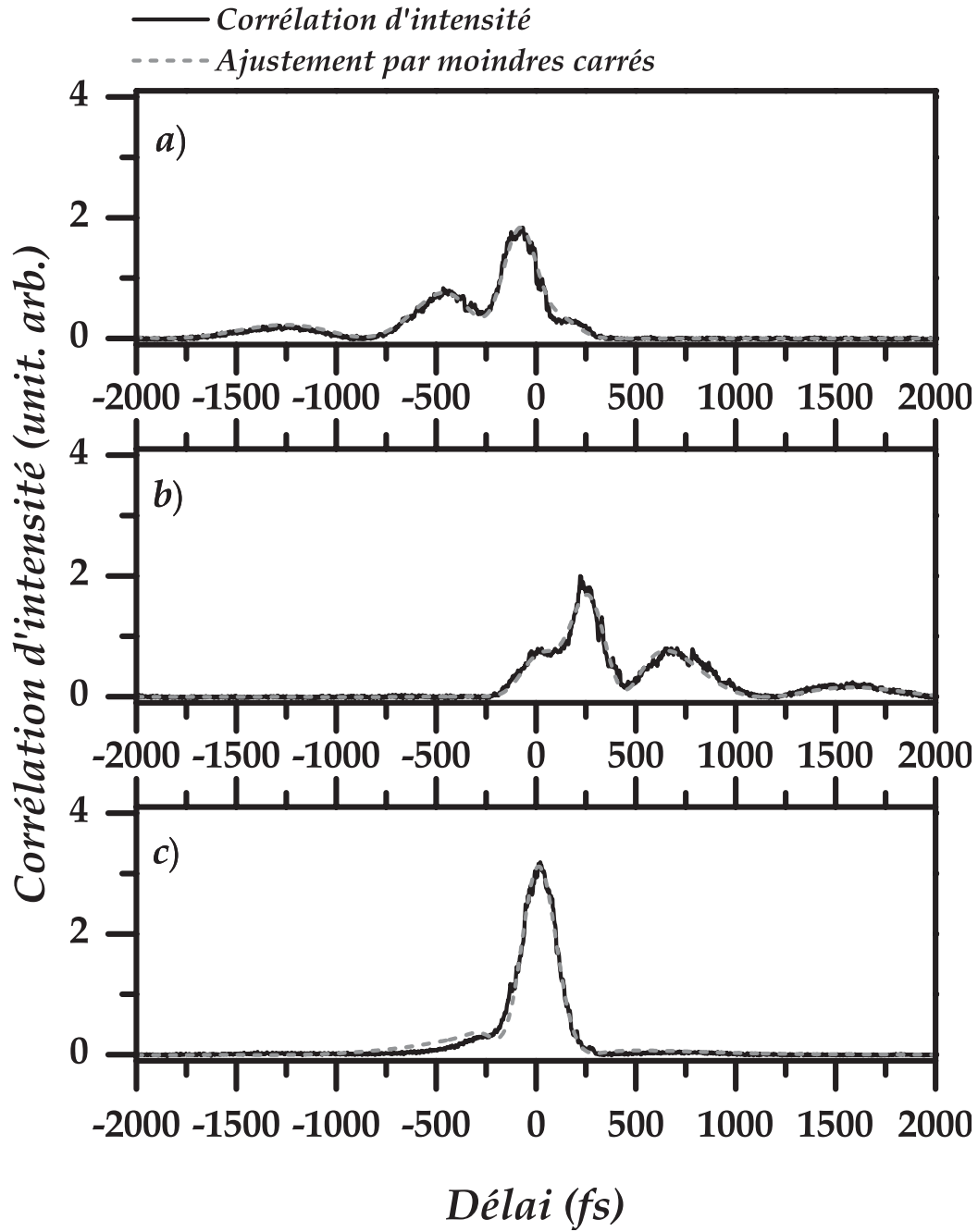


FIG. III.7 – Ajustement par moindres carrés des profils de corrélation de la figure III.5 : Dans le premier cas, les paramètres libres sont les paramètres de l'impulsion (durée, désaccord en fréquence, chirp initial) et la valeur de l'épaisseur optique du milieu. Dans le cas b), les paramètres libres sont réduits : l'épaisseur optique et la position de la résonance simulées par le SLM. Le dernier profil résulte de la combinaison des deux situations décrites en a) et b).

### III.3.3 Mesures par XFROG -Détermination de la phase spectrale

Dans cette partie, exceptée la valeur de l'épaisseur optique légèrement différente, tous les paramètres expérimentaux sont identiques à ceux des parties précédentes de ce chapitre. Un premier examen des traces XFROG de l'impulsion initiale (III.8) et de l'impulsion restaurée (III.9) ne montre pas de différences significatives. La valeur du signal mesuré est représentée par une échelle de gris linéaire, le noir correspondant aux valeurs les plus fortes. Nous avons également représenté les contours d'intensité constante. Ces contours sont idéalement des ellipses. Dans les deux cas l'axe de ces ellipses est légèrement incliné. Nous n'avons pas déterminé cette inclinaison, mais elle peut être associée au chirp additionnel que nous avons mentionné précédemment et qui est responsable d'une durée de l'impulsion initiale supérieure à la durée limitée par transformée de Fourier.

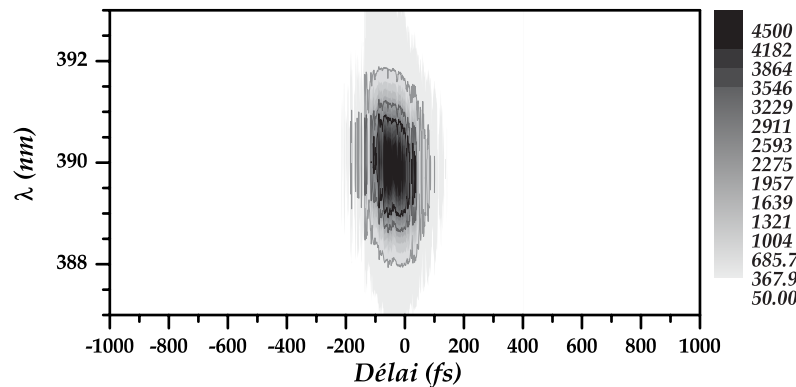


FIG. III.8 – Trace XFROG de l'impulsion limitée par transformée de Fourier avec l'impulsion de référence (échelle de niveaux de gris linéaire).

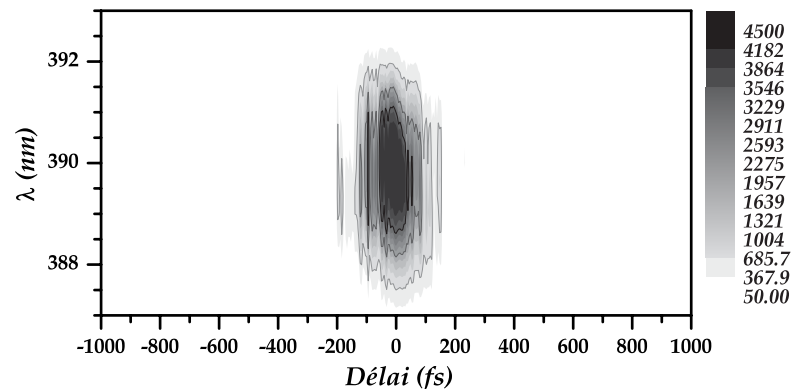


FIG. III.9 – Trace XFROG de l'impulsion après compensation avec l'impulsion de référence (échelle de niveaux de gris linéaire).



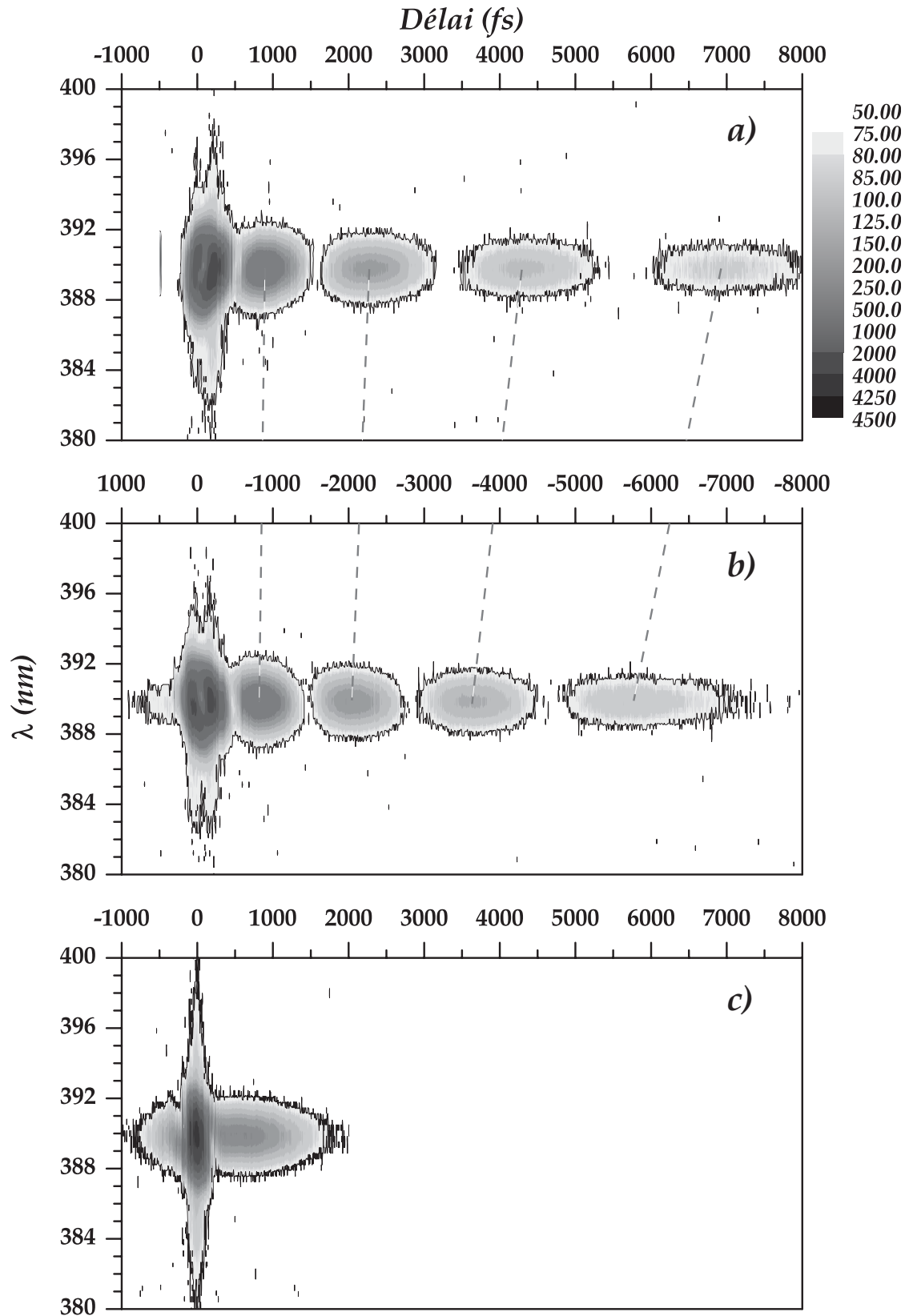


FIG. III.10 – Trace XFROG des différentes étapes de la compensation (de haut en bas) : Impulsion produite par le SLM seul, impulsion après propagation dans le four seul (à noter l'inversion du temps) et l'impulsion après l'action du SLM et de la dispersion résonante (échelle de gris non linéaire).

Un examen plus détaillé permet d'interpréter partiellement la forme temporelle de l'impulsion restaurée. La figure III.10 montre les traces XFROG des trois étapes de l'expérience de compensation pour des conditions expérimentales différentes ( $e_{SLM} = 14500$ ). L'échelle de niveaux de gris n'est pas linéaire. Elle est adaptée de sorte à rendre visible les rebonds temporels de faible intensité. Comme nous l'avons vu, les impulsions produites par le système de mise en forme (III.10.a) et par propagation dans la vapeur atomique (III.10.b) sont renversées dans le temps l'une par rapport à l'autre. Il est donc possible d'établir une correspondance et d'assigner le  $n$ -ième rebond de la première au  $n$ -ième rebond de la seconde. Cette correspondance est matérialisée sur le figure III.10 par les droites en traits pointillés. Ces droites ne sont pas parallèles et les rebonds se décalent progressivement. Ce décalage traduit la différence entre l'effet introduit réellement par le SLM et la phase introduite idéalement. Le SLM n'introduit pas une conjugaison de phase parfaite et les deux impulsions ne sont pas rigoureusement renversées dans le temps l'une par rapport à l'autre. Dans le cas présent les rebonds dus à la vapeur atomique sont plus resserrés que ceux dus au SLM.

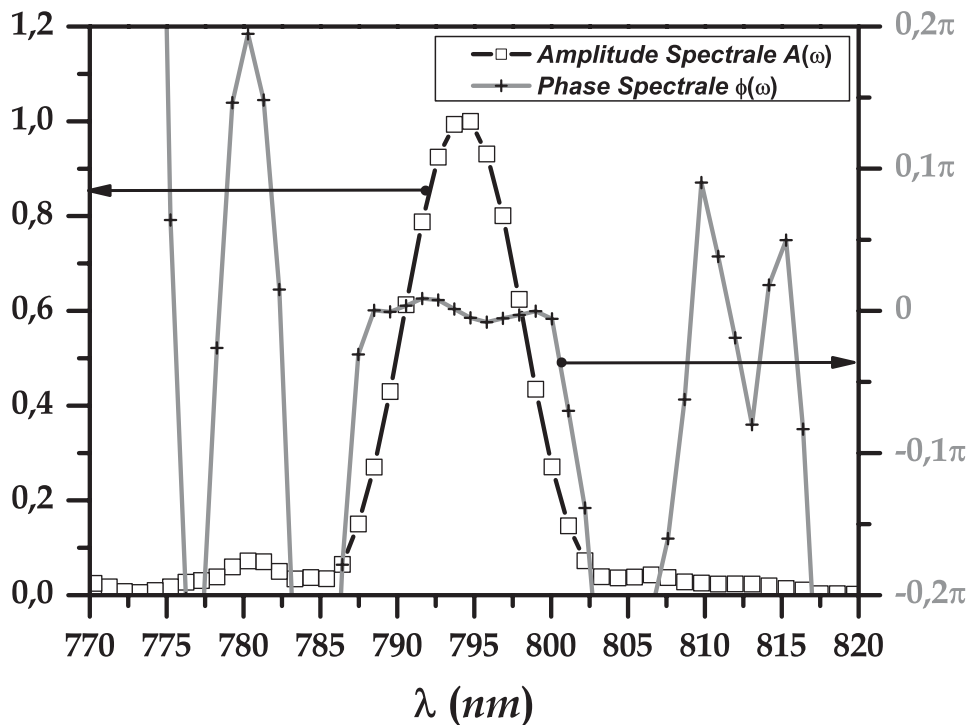


FIG. III.11 – Amplitude et phase spectrale de l'impulsion reconstruite : La résolution après rééchantillonnage est de 1,1 nm. Quand les valeurs de l'amplitude spectrale (échelle de gauche) ne sont pas assez significatives, la phase spectrale (échelle de droite) est mal définie et présente des grandes variations à cause du bruit présent sur le signal.

Afin de vérifier que par ailleurs la phase est correctement compensée, nous avons reconstruit l'amplitude et la phase spectrale à partir des traces XFROG. Nous utilisons l'algorithme de reconstruction PCGPA (Principal Component Generalized Projections Algorithm) [68]. Cet algorithme utilise des transformations de Fourier rapides (FFT). Pour

augmenter encore la vitesse de calcul, les matrices de points des traces XFROG sont rééchantillonnées sous forme de matrices carrées  $2^N \times 2^N$ . L'opération de rééchantillonnage se fait en adaptant le pas temporel  $\Delta t$  et le pas fréquentiel  $\Delta\omega$ , de sorte que les deux espaces - temps et fréquence - coïncident par transformation de Fourier. L'algorithme est appliqué de manière itérative et l'impulsion reconstruite (ainsi que l'impulsion "porte") est obtenue quand la convergence de la procédure est suffisante. Cette convergence est évaluée en minimisant l'erreur entre la trace XFROG rééchantillonnée et la trace XFROG reconstruite.

Les traces rééchantillonnées sur  $128 \times 128$  ont une résolution temporelle de  $\Delta t = 7,8$  fs et une résolution spectrale  $\Delta\lambda = 1,1$  nm. La figure III.11 est la transformée de Fourier de l'impulsion reconstruite. L'amplitude spectrale  $A(\omega)$  a des valeurs significatives sur un intervalle d'environ 15 nm centré autour de la longueur du laser à 794,8 nm. La phase spectrale  $\phi(\omega)$  est alors bien définie sur cet intervalle. L'amplitude spectrale ne présente pas de structures particulières, compte tenu de la résolution dont on dispose. La phase spectrale est sensiblement constante. En effet, la figure III.12 montre un agrandissement de la phase, et elle ne varie que de quelques dizaines de milliradians ( $\Delta\phi < 60$  mrad) sur un intervalle de 11 nm.

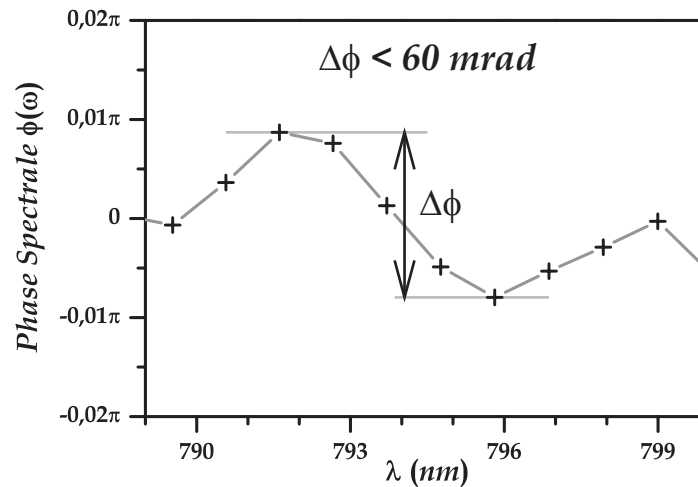


FIG. III.12 – Phase spectrale de l'impulsion reconstruite (détail) : La variation de phase  $\Delta\phi$  est inférieure à 60 mrad sur un intervalle de 11 nm

Cette phase quasiment constante est un bon résultat dans la mesure où on a compensé la distorsion initiale causée par la dispersion résonante, qui elle présente de nombreuses oscillations du fait de la variation rapide de la phase  $\phi_{\text{disp}}$ . Les détails de la phase spectrale reconstruite, même s'ils sont peu importants, restent difficiles à interpréter avec la résolution dont nous disposons. De plus nous allons voir dans la partie III.4 suivante que le spectre des impulsions est affecté par les limitations du SLM ; il présente un trou qui n'est pas présent sur le spectre de l'impulsion reconstruite par XFROG.

## III.4 Limitations et alternative

Nous avons appliqué une méthode simple et efficace de compensation de la dispersion résonante. L'ensemble des résultats précédents montre que l'on obtient une très bonne compensation, en particulier si on considère la largeur du pic principal. Cependant la présence du piédestal autour de -300 fs ainsi que du pic secondaire à 750 fs, montre que cette compensation est imparfaite. Nous pouvons comprendre l'origine de ces écarts à la compensation idéale en examinant le processus de compensation dans le domaine spectral.

### III.4.1 Résultats sur le profil spectral à plus haute résolution

Quand on se place dans le domaine spectral avec une résolution suffisante, on peut comprendre à la fois la bonne qualité de la compensation mais également ses limitations. Tout d'abord on peut se rendre compte de manière assez immédiate que la phase spectrale programmée est globalement bien reproduite par la phase obtenue, comme le montre la figure III.13 (voir aussi figure III.18 et III.15). En particulier, la première oscillation du sinus, qui correspond à une variation de la phase de  $2\pi$ , est reproduite fidèlement. Ceci est obtenu grâce à la haute résolution du façonneur d'impulsions. C'est un point particulièrement important car de cette manière la plupart de l'énergie spectrale de l'impulsion initiale voit sa phase convenablement choisie. Cependant on constate sur le spectre représenté sur la figure III.14, la présence au voisinage de la résonance d'un trou de 1 nm de largeur à mi-hauteur.

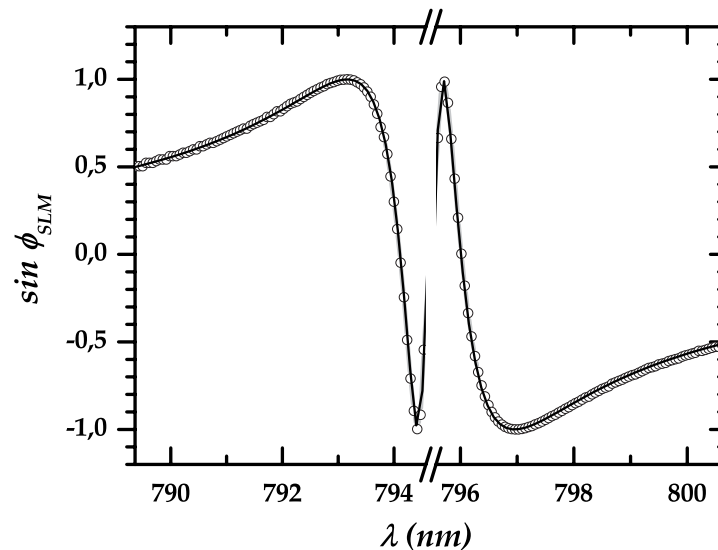


FIG. III.13 – Sinus de la phase introduite par le SLM : La phase obtenue (cercles noirs et trait gris) est extraite à partir de tensions appliquées sur les pixels pour une épaisseur optique programmée (trait continu noir) de 18750 (seule la zone située 1nm de part et d'autre de la résonance n'est pas représentée). La première oscillation du sinus est reproduite fidèlement grâce à la haute résolution du dispositif de mise en forme.

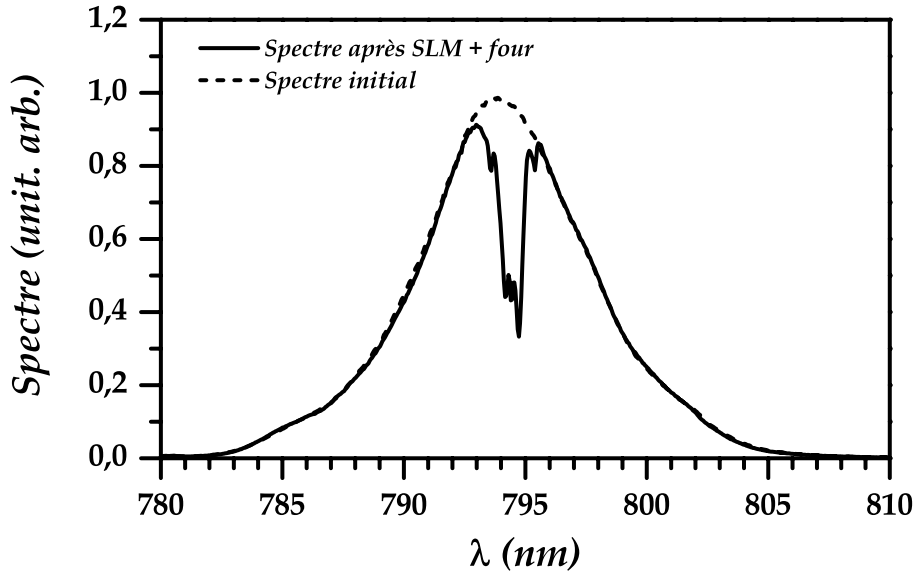


FIG. III.14 – Spectre de l’impulsion restaurée : Le spectre de l’impulsion restaurée (trait continu) présente un trou par rapport au spectre de l’impulsion incidente (trait pointillé). Les conditions expérimentales sont identiques à la partie III.3.

Revenons sur le principe de la compensation. L’effet cumulé de la vapeur atomique et du SLM se traduit par l’application sur le spectre de l’impulsion laser de la fonction de transfert totale  $H(\omega)$  donnée par :

$$\begin{aligned} H(\omega) &= R_{\text{disp}}(\omega) \times T_{SLM}(\omega) \\ &= (e^{i\phi_{\text{disp}}}) \times (|T_{SLM}(\omega)|e^{i\psi_{SLM}}) \end{aligned} \quad (\text{III.3})$$

où les phases  $\phi_{\text{disp}}$  et  $\psi_{SLM}$  définies comme :

$$\phi_{\text{disp}} = -\frac{\alpha_0 L \Delta_d}{\omega - \omega_{21}} \quad (\text{III.4a})$$

$$\psi_{SLM} = \phi_{SLM} + \delta\phi_{SLM} = \frac{e_{SLM} \Delta_d}{\omega - \omega_{21}} + \delta\phi_{SLM} \quad (\text{III.4b})$$

traduisent respectivement l’action de la dispersion résonante et l’action du SLM. Dans la définition de  $\psi_{SLM}$  la phase réellement introduite par le SLM, le terme  $\delta\phi_{SLM}$  regroupe toutes les sources d’erreurs sur la phase car la phase réellement introduite par le dispositif de mise en forme diffère de la phase programmée. Nous introduisons également  $|T_{SLM}(\omega)|$  qui traduit le fait que le SLM est susceptible d’affecter le spectre de l’impulsion. Pour réaliser la meilleure compensation possible, l’effet conjugué de la vapeur atomique et du SLM doit être tel  $H(\omega) = \mathbb{1}(\omega)$  (transmittance unité <sup>d</sup>). Les limitations à la compensation idéale sont alors les sources d’erreurs liées à la phase résiduelle  $\delta\phi_{SLM}$  et à l’atténuation  $|T_{SLM}(\omega)|$  des composantes spectrales transmises par le SLM. Ces limitations que nous

<sup>d</sup> Quel que soit  $\omega$  on veut que  $H(\omega) = C^{\text{te}} = 1 \equiv \mathbb{1}(\omega)$

allons étudier dans la section suivante, sont intrinsèques au dispositif de mise en forme que nous utilisons.

Une remarque importante s'impose : la compensation n'est jamais parfaite à cause des limitations du SLM qui porte sur la phase et l'amplitude de l'impulsion mise en forme. On est donc dans une situation où, pour minimiser la distorsion due à la propagation, on compense l'erreur liée à la modification du spectre par une erreur sur l'épaisseur optique programmée. On ne dispose en effet que de cet unique paramètre pour modifier la mise en forme des impulsions. Ainsi la valeur de  $e_{SLM}$  programmée qui minimise la distorsion est nécessairement toujours différente de  $\alpha_0 L$ , ce qui explique en particulier les différences de valeurs que l'on observe. Les autres sources d'erreurs sont liées à la phase spectrale accumulée lors de la traversée des éléments optiques du montage, et qui n'est pas modélisée dans la phase que l'on programme dans le façonneur d'impulsions. A noter enfin que le niveau spin-orbite  $5p \ ^2P_{\frac{3}{2}}$  situé à environ 14 nm ( $\lambda_{P_{\frac{3}{2}}} = 780,027$  nm) modifie légèrement la phase spectrale de dispersion.

### III.4.2 Limitation principale : Pixellisation et Diffraction

Le façonneur d'impulsions utilise un modulateur optique placé dans le plan de Fourier d'une ligne à dispersion nulle. Ce modulateur est constitué d'un nombre fini de pixels. Les conséquences de la pixellisation restent faibles tant que la phase ne varie pas trop rapidement. L'effet de la pixellisation est négligeable si la variation de phase est telle que :

$$\delta\omega_p \left| \frac{\partial\phi_{SLM}}{\partial\omega} \right| \ll 2\pi \quad (\text{III.5})$$

c'est-à-dire que la phase varie peu sur l'intervalle spectral  $\delta\omega_p$  associé à la largeur d'un pixel. C'est en particulier le cas de la phase qui est introduite loin de la résonance. La phase varie assez lentement pour être reproduite fidèlement. Au delà de cette limite, la phase est fortement sous échantillonnée comme on peut le voir sur la figure III.15. Quand on se rapproche de la résonance, le sinus de la phase programmée présente de plus en plus d'oscillations sur la largeur d'un pixel. La phase obtenue montre alors un comportement erratique. Dans ce régime, la phase résiduelle devient importante. En effet sur un pixel la phase introduite est constante, alors que dans le même temps les composantes spectrales contenues dans l'intervalle de fréquence  $\delta\omega_p$  associé à la largeur du pixel, subissent une variation de phase importante due à la résonance atomique. La phase spectrale de ces composantes de fréquence au voisinage de la résonance n'est alors pas compensée.

Dans cette région, le spectre présente également un trou (figure III.14). On comprend l'origine de ce trou en se plaçant dans le plan de Fourier du système de mise en forme. La transmittance spectrale  $T_{SLM}(\omega)$  introduite par le masque est donnée par (cf. I.18) :

$$T_{SLM}(\omega) \propto \int M\left(\frac{\omega'}{\alpha}\right) \exp\left[-\left(\frac{\omega - \omega'}{\Delta\omega}\right)^2\right] d\omega'$$

où  $M(x)$  désigne l'amplitude complexe introduite par le masque. Ce masque est convolué par la gaussienne qui représente le profil spatial d'intensité de la tache focale associée à

chaque longueur d'onde dans le plan de Fourier. Cet effet est la conséquence de la diffraction des faisceaux gaussiens : chaque composante spectrale donne une tache focale (au plan de Fourier) limitée par diffraction et non pas un point. Comme le montre la figure III.16, quand le masque correspond à un saut de phase de  $\pi$  entre deux pixels adjacents, les composantes spectrales au voisinage du saut sont fortement atténuées. Le cas extrême est évidemment celui de la longueur d'onde qui coïncide avec le saut de phase. Une moitié de la tache focale est changée de signe tandis que l'autre moitié est inchangée. Les deux moitiés interfèrent destructivement. La longueur d'onde en question est alors absente du spectre.

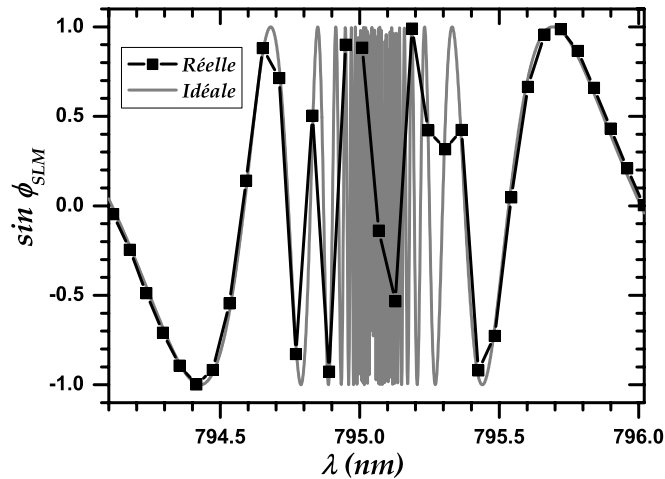


FIG. III.15 – Sinus de la phase introduite par le SLM - Effet de la pixellisation : *La haute résolution du SLM n'est pas suffisante pour reproduire la phase théorique qui oscille rapidement au voisinage la résonance : la phase est sous-échantillonnée.*

Cette situation assez générale montre qu'il existe un couplage entre la phase programmée dans le masque et l'amplitude transmise. Dans le cas de la compensation résonante, ce couplage phase-amplitude apparaît de manière significative autour de la résonance quand la phase spectrale varie rapidement. La figure III.17 illustre ce phénomène : dans l'intervalle de longueur d'onde représenté, on est susceptible d'avoir jusqu'à neuf trous (signalés par des flèches) d'importance relative. C'est la présence de ces trous qui limite les performances de la compensation. Bien que les effets dus à la pixellisation et ceux dus à la diffraction soient indépendants, les trous (diffraction) apparaissent à la frontière entre deux pixels (pixellisation). Si le dispositif de mise en forme avait une résolution infinie, l'effet de la diffraction persisterait : la variation de la transmittance se convolue alors avec le profil d'intensité de la tache focale d'une composante spectrale au plan de Fourier. Ainsi contrairement au cas du SLM où l'effet de diffraction apparaît au voisinage de la transition entre deux pixels, un dispositif de résolution infinie ressent de manière répartie l'effet de la diffraction sur la gamme de fréquence affectée. Nous rediscuterons de l'effet de la résolution dans la partie III.5

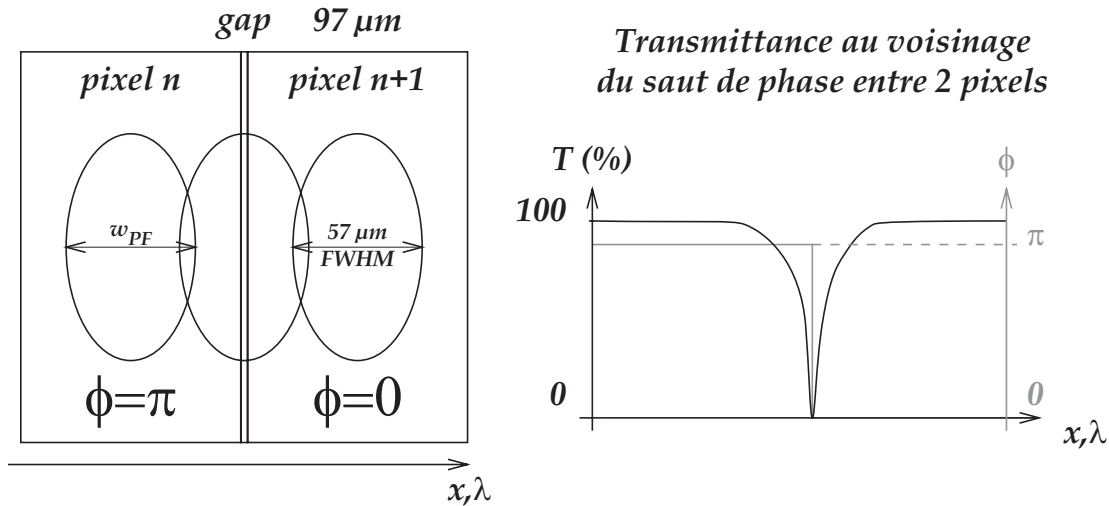


FIG. III.16 – Taches focales sur le SLM au plan de Fourier et allure théorique du trou spectral introduit par un saut de phase de  $\pi$  entre deux pixels adjacents : Au voisinage du saut de phase toutes les composantes spectrales sont atténuées plus ou moins fortement. Le trou a une taille maximale de  $57 \mu\text{m}$  ( $0,035 \text{ nm}$ ).

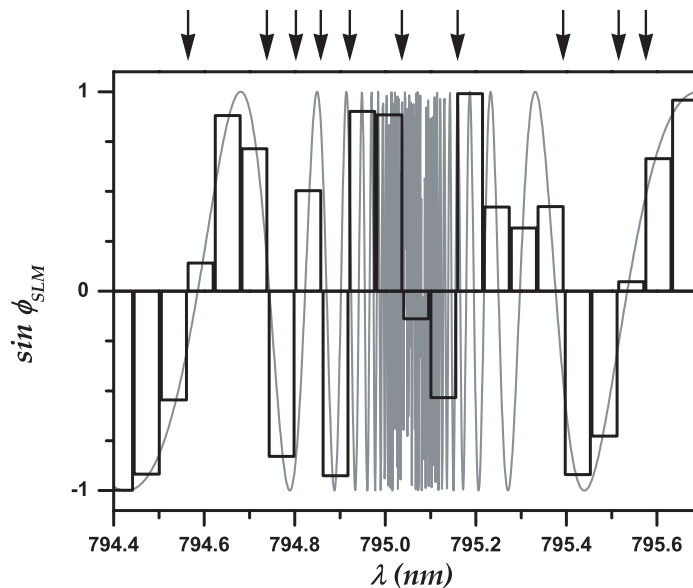


FIG. III.17 – Phase introduite par le SLM : Les flèches indiquent les variations brusques de phase entre deux pixels adjacents qui sont susceptibles de conduire à l'apparition d'un trou spectral. La valeur prise par le sinus de la phase au niveau d'un pixel est représentée par un rectangle. Cette valeur, constante sur tout l'intervalle spectral associé à un pixel, est à comparer à la valeur obtenue dans le cas continu (représenté en gris). Les différences les plus marquées apparaissent au voisinage de la résonance quand la phase varie rapidement.



### III.4.3 Autres limitations

La phase résiduelle  $\delta\phi_{SLM}$  contient une autre contribution qui provient de la digitalisation de la tension appliquée sur les pixels. La digitalisation en tension produit un écart systématique entre la phase voulue et la phase réellement appliquée. Cet effet est négligeable et n'est visible essentiellement que pour les faibles valeurs de la phase (figure III.18) et n'affecte donc que les ailes du spectre. Cet effet est masqué par les conséquences de la pixellisation et de la diffraction qui sont beaucoup plus importantes.

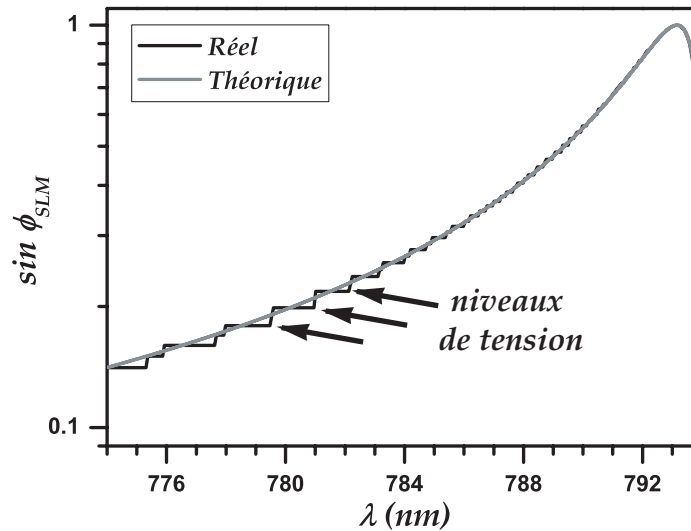


FIG. III.18 – Sinus de la phase introduite par le SLM - Effet de la digitalisation : *Les tensions appliquées sur les pixels sont discrétisées sur 4096 niveaux. Cet effet est particulièrement visible sur les faibles valeurs de la phase.*

### III.4.4 Alternative : Compensation par une phase plate à résonance

#### III.4.4.1 Principe

Nous avons vu que la compensation de la phase produit de très bons résultats sur le profil temporel des impulsions restaurées, mais qu'en revanche le spectre est fortement perturbé au voisinage de la résonance où il présente un trou. Ce trou est la conséquence d'une résolution finie du système de mise en forme liée à sa constitution discrète de 640 pixels. On peut contourner cette difficulté en programmant une phase plate sur un intervalle de fréquence (figure III.19) où la résolution du SLM n'est plus suffisante pour reproduire la phase de compensation voulue<sup>ε</sup>. En fait on pourrait programmer une phase arbitraire, tant que l'atténuation due au couplage phase-amplitude reste faible. Cependant la phase plate est la plus simple à mettre en œuvre et peut se justifier de deux manières équivalentes.

<sup>ε</sup>Cet intervalle est déterminé en augmentant progressivement la phase par pas de  $\pi/2$ , soit le nombre d'oscillations de la phase par aps de  $1/4$  (cf figure III.19), jusqu'à obtenir un résultat satisfaisant.

D'une part si on regarde la phase analytique à programmer (modulo  $2\pi$ ), la moyenne sur un intervalle de fréquence donné tend rapidement vers zéro à cause de la variation rapide de la phase. D'autre part le sous échantillonnage produit sensiblement le même effet en générant des valeurs presque aléatoirement dont l'effet est nul en moyenne. Afin de comprendre les modifications apportées par cette nouvelle approche, nous allons comparer les profils temporels et spectraux obtenus par l'application des deux méthodes : reproduction de la phase totale ou utilisation d'une phase plate à résonance.

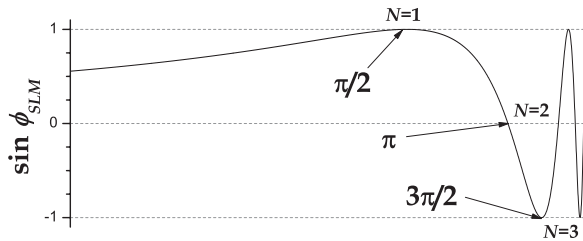


FIG. III.19 – Choix de l'intervalle de phase plate : La phase plate ( $\phi = 0$ ) est appliquée sur des intervalles centrés sur la longueur d'onde de la transition, et dont les bornes sont choisies quand la phase est un multiple entier de  $\pi/2$

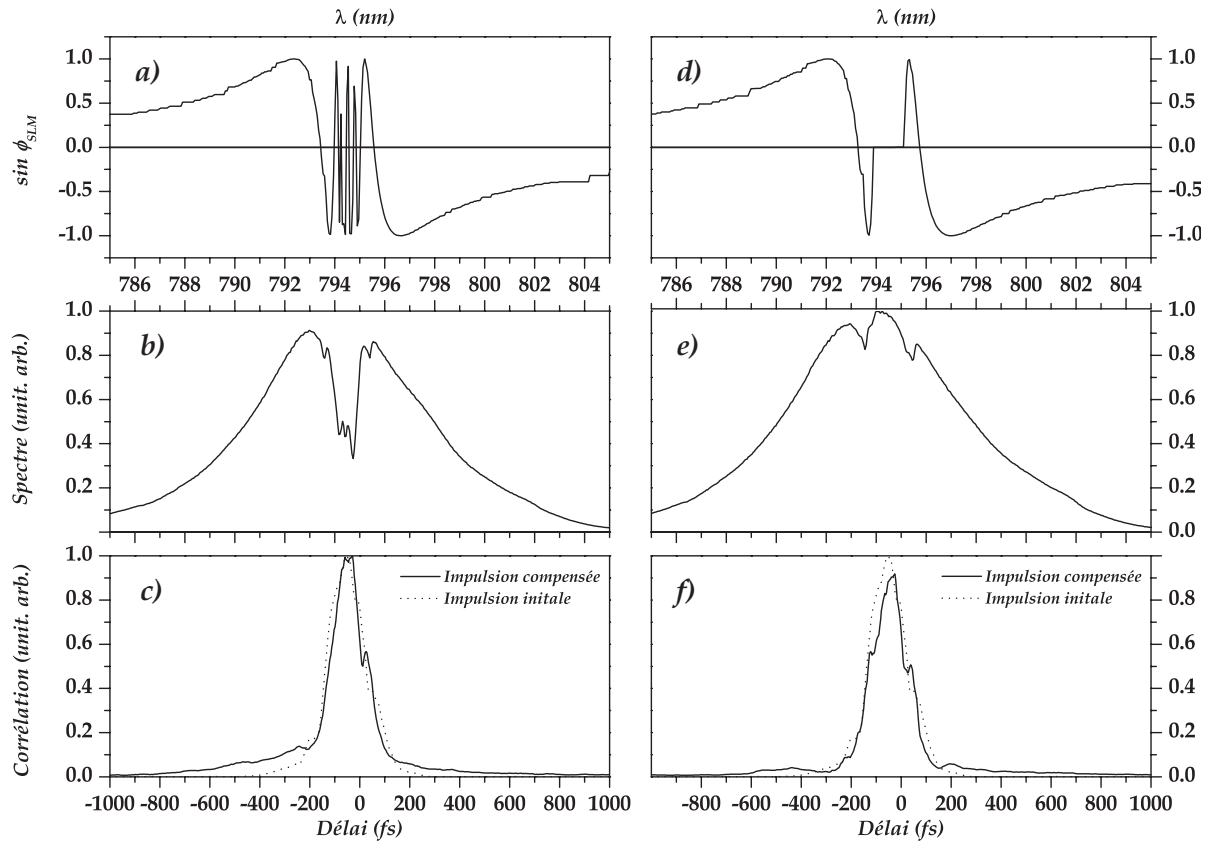


FIG. III.20 – Phase totale et phase plate - Comparaison : La phase introduite par le SLM correspond à la phase totale (a), à l'approximation de la phase plate dans la cas d'une oscillation de  $2\pi$  ( $N = 4$  sur la figure III.19)(d). L'application d'une phase plate se traduit par une amélioration du spectre de l'impulsion compensée (e), où le trou central a pratiquement disparu. Dans les deux cas de figure (c) et (f), l'énergie de l'impulsion est refocalisée temporellement avec une efficacité comparable. Les conditions expérimentales sont identiques à la partie III.3.

### III.4.4.2 Résultats et comparaison des deux méthodes

La première méthode de compensation introduit la phase spectrale conjuguée du milieu et couvre sur tout le domaine spectral de la résonance. L'impulsion obtenue possède les caractéristiques temporelles de l'impulsion courte initiale, cependant quelques défauts subsistent. Ils sont la conséquence de l'impossibilité pour le SLM à reproduire la phase exacte qui varie trop rapidement par rapport à la pixellisation du masque. L'application d'une phase plate se traduit immédiatement par une amélioration du spectre de l'impulsion compensée (figure III.20). Cela est dû au nombre moins important de sauts de phase introduits par le SLM. En effet, considérons un domaine de fréquence proche de la résonance qui, dans le cas où on essaie de reproduire toute la phase avec le SLM, présente un trou spectral. Dans le cas de la phase plate, l'énergie associée à ce domaine ne sera pas atténuée par le système de mise en forme. Les composantes spectrales ne seront pas compensées et seront étalées temporellement. Une fraction de l'énergie apparaîtra toujours dans le pic principal de l'impulsion restaurée, tandis qu'une autre fraction sera dissipée dans les ailes.

La phase plate fournit également des résultats excellents en terme de durée de l'impulsion restaurée. La compensation est qualitativement comparable et aussi satisfaisante, même si les deux méthodes ne sont pas équivalentes. Dans le premier cas, on privilégie la compensation de la phase. Dans la seconde méthode, on applique la compensation uniquement dans un domaine spectral où le SLM fonctionne convenablement. La phase des composantes spectrales proches de la résonance n'est alors pas compensée, mais on affecte peu le spectre de l'impulsion.

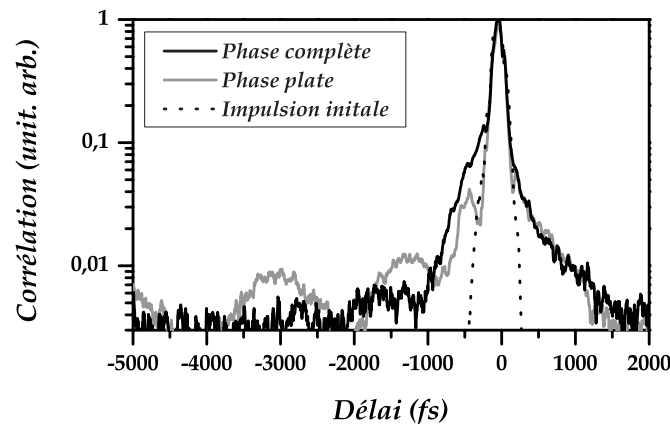


FIG. III.21 – Phase totale et phase plate - différences dans la fidélité de la compensation : Pour une phase plate qui reproduit la première oscillation de  $2\pi$ , la compensation autour du maximum de l'impulsion est comparable au cas de la phase totale. La différence réside dans les ailes de l'impulsion qui présentent des rebonds (visibles en échelle logarithmique). Les conditions expérimentales sont identiques à la partie III.3.

A la vue des résultats de la phase plate, on peut penser que cette méthode est la meilleure puisqu'elle préserve le spectre tout en délivrant une impulsion assez courte. Cependant un examen détaillé montre (figure III.21) que l'impulsion restaurée par la phase plate présente des rebonds, 100 fois plus faibles en intensité que le pic principal. Ces rebonds

qui résultent du créneau de phase plate, apparaissent à des temps relativement longs (-1200 fs, -3000 fs, etc), et peuvent jouer le rôle de pré/post impulsions dont l'effet est néfaste pour certaines applications, comme par exemple la génération d'impulsions amplifiées avec un grand contraste temporel.

### III.5 Effets de la résolution

Nous avons donc vu qu'il est possible de compenser la dispersion résonnante introduite par la vapeur atomique, ce qui n'est pas réalisable par des dispositifs habituels et nécessite l'utilisation d'un façonneur d'impulsions d'impulsion haute résolution. Pour compléter cette étude, nous avons simulé différentes résolutions spectrales du SLM en regroupant les pixels, c'est-à-dire que l'on a appliqué la même phase sur 2, 5 ou 8 pixels. Ainsi on reproduit le comportement de SLM comptant respectivement 320, 128 ou 80 pixels sur 38 nm environ. La phase appliquée est la phase totale (pas de phase plate à résonance).

Il apparaît que dans notre cas, la compensation nécessite un minimum de 128 pixels pour obtenir une impulsion restaurée suffisamment fidèle à l'impulsion initiale. Nous remarquons un saut qualitatif (figure III.22) entre une résolution de 80 et de 128 pixels. Une telle résolution est en effet nécessaire pour reproduire convenablement la première oscillation de la phase spectrale, et une résolution de 0,48 nm (80 pixels) ne peut en aucun cas être utilisée pour cette application. Par ailleurs, une autre tendance intéressante se dégage de ces résultats. On constate qu'il existe en effet peu de différences entre les profils obtenus avec une résolution de 320 ou 640 pixels. Cela semble indiquer qu'il n'est pas nécessaire d'augmenter la résolution du système pour obtenir de meilleurs résultats. On comprend aisément que l'augmentation de résolution est sans effet sur la qualité de la première oscillation lorsque celle-ci est déjà bien reproduite par une résolution inférieure. En revanche, on pourrait s'attendre à ce qu'une augmentation de résolution améliore les résultats au voisinage immédiat de la résonance en limitant le phénomène de sous échantillonnage. Cependant une résolution plus grande conduit inévitablement à l'apparition d'un plus grand nombre de trous liés aux sauts de phase qui sont toujours présents. C'est l'apparition de ces trous qui contrecarre les bénéfices liés à l'augmentation de la résolution.

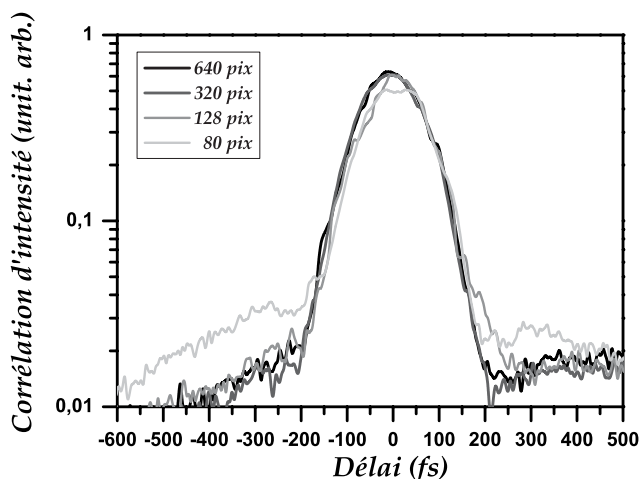


FIG. III.22 – Effet de la résolution : Le signal de corrélation d'intensité de l'impulsion après compensation, est représenté (échelle logarithmique) pour des résolutions différentes obtenues en regroupant les pixels. Les conditions expérimentales sont identiques à la partie III.3 excepté  $e_{SLM} = 14500$ .

## III.6 Conclusion et Perspectives

Dans ce chapitre nous avons décrit une méthode simple de compensation directe de la dispersion résonante. Cette méthode utilise un dispositif de mise en forme d'impulsion haute résolution, constitué d'un SLM (*Spatial Light Modulator*) de 640 pixels. Le SLM, placé au plan de Fourier d'une ligne à dispersion nulle, introduit une phase spectrale  $\phi_{SLM} \simeq -\phi_{disp}$  qui compense (au sens de la minimisation) la phase spectrale accumulée au cours de la propagation d'une impulsion courte dans une vapeur atomique. La compensation est excellente mais reste imparfaite du fait des limitations (pixellisation et diffraction) intrinsèques au dispositif utilisé. La dégradation du spectre observée quand on essaye de reproduire toute la phase spectrale, peut être évitée en programmant une phase plate dans l'intervalle spectral où les limitations du SLM apparaissent.

L'utilisation comme masque d'un SLM est en général bien adaptée pour obtenir des mises en forme complexes en phase et en amplitude, même sur des impulsions de forte intensité, dans la limite de la puissance admissible par les réseaux (l'étalement spatial des composantes spectrales dans le plan de Fourier diminue fortement la densité de puissance appliquée sur le SLM). Cependant la complexité des mises en forme accessibles est restreinte par l'existence d'un couplage phase-amplitude, dû aux limitations de ce dispositif et qui détériore le spectre des impulsions. C'est en particulier le cas de la dispersion résonante que nous avons étudiée dans ce chapitre.

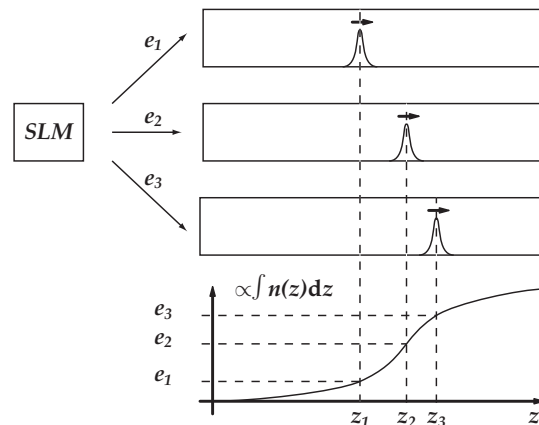
Il existe d'autres dispositifs de mise en forme qui ne possèdent pas les mêmes limitations et dont l'utilisation peut être préférable dès que l'on souhaite introduire des phases spectrales qui présentent des variations rapides. Parmi les dispositifs disponibles, on peut imaginer substituer le SLM par un masque non pixellisé comme un modulateur acousto-optique (AOM *Acousto Optic Modulator*). Avec l'AOM, bien que non limité par la pixellisation, les problèmes liés à la diffraction dans le plan de Fourier persistent. En revanche, l'efficacité de ces dispositifs est faible (diffraction par l'onde acoustique peu efficace  $\simeq 30\%$ ). De plus, leur géométrie spécifique, liée à la déviation du faisceau, introduit des aberrations géométriques. Par ailleurs, ils sont limités à des taux de répétition du laser inférieurs au MHz : le générateur d'ondes acoustiques ne pourrait pas fonctionner à une telle cadence. L'utilisation d'un AOPDF (*Acousto Optic Programmable Dispersion Filter*) est également envisageable. Un tel dispositif n'utilise pas de ligne à dispersion et n'est donc pas limité par la diffraction dans le plan de Fourier. Cependant, comme ce dispositif utilise la diffraction de la lumière par une onde acoustique copropageante dans un cristal de  $\text{TeO}_2$ , son utilisation n'est possible que dans le cas d'impulsion assez faible (quelques dizaines de  $\mu\text{J}$ ) pour ne pas produire d'effet non linéaire voire endommager le cristal. Tout comme l'AOM, l'AOPDF est limité à l'usage en basse cadence, à cause du générateur d'ondes acoustiques. Enfin, les mises en forme accessibles sont limitées par la durée des impulsions et la longueur du cristal de  $\text{TeO}_2$ , qui offre une fenêtre temporelle d'utilisation de l'ordre de 5 ps dépendante de la bande spectrale du laser.

Quel que soit le dispositif utilisé, on peut améliorer la compensation et la détermination de la phase spectrale à appliquer par l'utilisation d'algorithmes d'optimisation [69–71]. Les critères d'optimisation (*fitness function* ou fonction de coût) peuvent par exemple être évalués à partir de la régression linéaire présentée sur la figure III.6 dans la section III.3.1.

Cependant, l'acquisition complète du profil de corrélation est nécessaire pour chaque phase testée. Le temps requis pour effectuer toutes ces opérations étant extrêmement long, il rend cette technique prohibitive. Une alternative consiste donc à optimiser dans un premier temps un signal de génération de seconde harmonique pour approcher au mieux la phase recherchée, puis à affiner le résultat. Dans la méthode de compensation que nous avons utilisée, l'expression de la phase spectrale est connue (établie à partir d'un modèle) et c'est cette phase que l'on programme dans le SLM. En revanche, pour un système quelconque (états de Rydberg, molécules, mélanges gazeux, solides, ...), on ne connaît pas la phase à appliquer et sa détermination passe nécessairement par l'utilisation d'un algorithme d'optimisation. On voit alors que dans le cas général, le problème de compensation se ramène à la détermination de la réponse spectrale  $R(\omega)$  du milieu traversé (on détermine en fait  $R^*(\omega)$ ) qui affecte la forme temporelle de l'impulsion [58]. Les effets de propagation sont en effet une source précieuse d'informations spectroscopiques sur le système étudié, car ils portent la signature de l'interaction lumière-matière.

La mise en pratique de ces méthodes de compensation, appliquée au problème de la propagation d'impulsions courtes dans l'atmosphère contenant de la vapeur d'eau, est envisageable. Il existe dans la vapeur d'eau de larges bandes d'absorption (près de 350000 raies d'absorption sur un spectre qui s'étend des ondes radio aux UV). La prise en compte de l'absorption seule ne suffit pas à expliquer la forme temporelle des impulsions. La distorsion ressentie par les impulsions est en effet essentiellement due à la dispersion de la vapeur d'eau [72]. Compte tenu de cela, on peut envisager la mise en œuvre expérimentale d'une expérience de compensation dans de telles conditions, afin d'évaluer par exemple la résolution nécessaire pour reproduire une réponse aussi complexe. Ceci peut être d'un grand intérêt pour des applications telles que le LIDAR ou les télécommunications, où les paramètres de l'impulsion (durée, déformation, intensité crête) sont des paramètres clés [73].

FIG. III.23 – Obtention du profil de densité : On réalise une série d'expériences où les épaisseurs optiques  $e_1, e_2, e_3$  sont programmées dans le système de mise en forme. Quand on détermine les positions  $z_1, z_2, z_3$  où se produit la compensation, on est capable d'en déduire le profil de densité  $n(z)$  donnée par dérivation de  $e(z) \propto \int n(z') dz'$ .



En plus de l'information spectroscopique, la compensation des effets de propagation est susceptible de fournir une information sur le profil longitudinal de la densité de particules  $n(z)$ . Le processus est décrit sur la figure III.23 : à l'aide d'un dispositif de mise en forme, on procède à une série d'expériences où différentes valeurs  $e_1, e_2, e_3, \dots$  de l'épaisseur optique de compensation sont programmées. Si on est capable de déterminer les distances  $z_1, z_2, z_3, \dots$  pour lesquelles les épaisseurs  $e_1, e_2, e_3, \dots$  réalisent la compensation (rétrodiff-

fusion, troisième harmonique, ...), on est alors capable d'en déduire le profil longitudinal  $e(z) \propto \int n(z')dz'$  dont on extrait  $n(z)$  par dérivation.

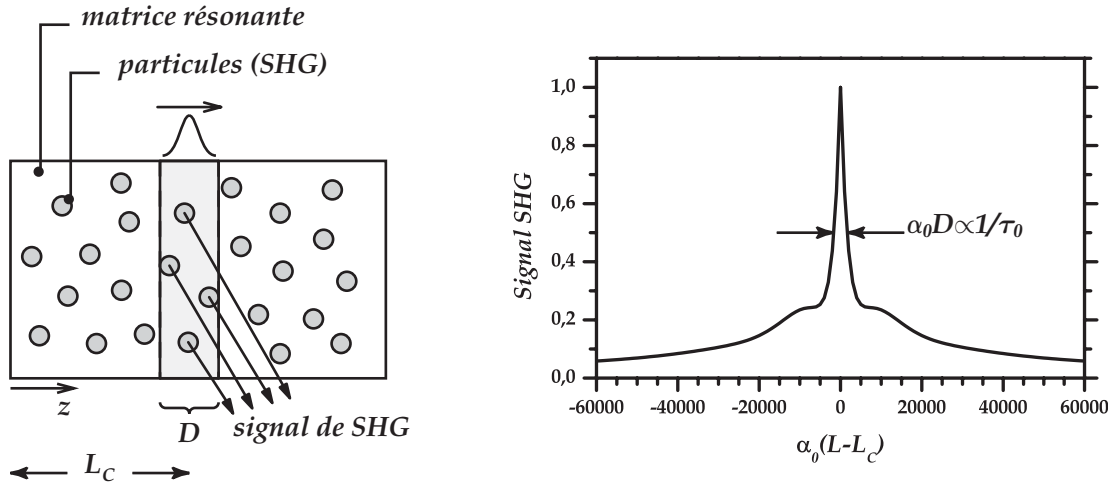


FIG. III.24 – Compensation dans une matrice résonante - Sélectivité en position : Des particules que l'on souhaite exciter (SHG) sont plongées dans une matrice résonante avec l'impulsion excitatrice. Avec un dispositif de mise en forme, on programme une phase spectrale qui compense la dispersion à une position  $z$  donnée. Le signal de SHG est émis de manière efficace sur une longueur  $D$  centrée en  $L_C$ , où l'impulsion est peu affectée par la dispersion.

Illustrons par un exemple cette possibilité : nous considérons l'expérience de principe présentée sur la figure III.24. On souhaite exciter à l'aide d'une impulsion laser, un ensemble de particules plongées dans une matrice et étudier le signal de seconde harmonique (SHG) de ces particules. L'impulsion laser est résonante avec les atomes qui constituent la matrice, et son profil temporel est donc affecté par la dispersion résonante. Excepté pour les très fortes densités, le signal SHG des particules affecte peu l'énergie  $W$  de l'impulsion incidente. On applique avec le système de mise en forme, une phase spectrale qui compense l'impulsion à une distance  $z$  donnée à l'intérieur de l'échantillon. Quand on s'écarte de cette position, l'impulsion  $E(t)$  est déformée symétriquement de part et d'autre. L'intensité du signal de SHG

$$I_{2\omega} \propto \int_{-\infty}^{+\infty} |E|^4(t, \alpha_0 L) dt$$

montre une dépendance avec l'épaisseur optique  $\alpha_0 L$  accumulée depuis cette position et dont l'allure est décrite sur la figure III.24. Au voisinage de la distance de compensation  $L_C$ , la largeur à mi-hauteur  $D$  varie proportionnellement<sup>f</sup> à  $\tau_0^{-1}$  (figure III.25). Comme en microscopie confocale, on réalise une excitation sélective en volume de l'échantillon étudié. Dans la mesure où l'excitation est sélective en position, on peut réaliser une coupe tomographique de l'échantillon. Comme  $D \propto \tau_0^{-1}$ , la sensibilité à la position est donc d'autant meilleure que la durée  $\tau_0$  des impulsions est grande (figure III.25). Une impulsion nanoseconde ne peut pas convenir dans la mesure où elle est absorbée rapidement par

<sup>f</sup>  $I_{2\omega}/I_{2\omega,\max} \simeq 1 - 12\alpha_0 L \Delta_D \tau_0$

les atomes de la matrice et ne pénètre pas l'échantillon en profondeur. En revanche une impulsion picoseconde peut être tout à fait adaptée à ce type d'expérience.

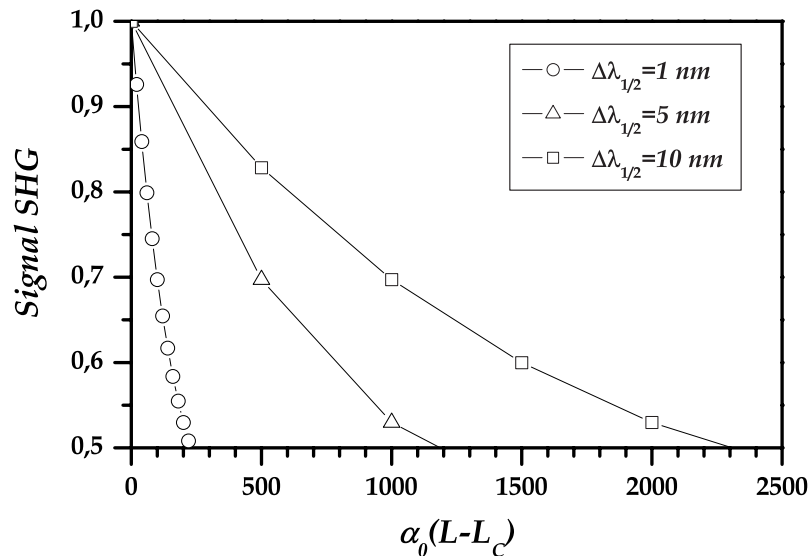


FIG. III.25 – Compensation dans une matrice résonante - Variation avec la durée des impulsions : Le signal de SHG est calculé à partir de simulations réalisées pour une impulsion centrée à 800 nm pour des largeurs spectrales à mi-hauteur  $\Delta\lambda_{1/2}$  de 1 nm, 5 nm et 10 nm. Les valeurs d'épaisseur optique accumulées depuis  $L_C$  pour lesquelles le signal de SHG est diminué de moitié sont respectivement 230, 1150 et 2300.

Enfin, la transposition de ces méthodes au régime de champ fort (interaction résonante) est intéressante, bien qu'elle ne soit pas immédiate. En effet, en régime de champ fort les effets de propagation affectent non seulement la phase mais aussi l'intensité spectrale des impulsions. En régime de champ faible, pour réaliser la compensation, on peut permuter indépendamment l'ordre dans lequel on se propage à travers le milieu et le SLM, on a  $R(\omega)T(\omega) = T(\omega)R(\omega)$ , où le milieu est caractérisé par sa réponse spectrale  $R(\omega)$  et la mise en forme est donnée par la transmittance  $T(\omega)$  du SLM. En régime de champ fort les deux opérations (propagation et mise en forme) ne commutent plus ( $RT \neq TR$ ). Même l'utilisation d'un algorithme d'optimisation ne suffit pas à réaliser la compensation, car des nouvelles composantes spectrales sont présentes à l'intérieur du spectre de l'impulsion [74]. Cependant, un système de mise en forme fonctionnant en boucle fermée peut être utilisé pour déterminer la mise en forme des impulsions pour laquelle les effets de distorsion sont minimisés au cours de la propagation. Le problème de compensation des non linéarités soulève des questions théoriques et techniques intéressantes dans le domaine du développement de sources laser encore plus courtes et encore plus intenses [75, 76] (e.g. compensation du rétrécissement par le gain).



## Chapitre IV

# PROPAGATION DANS UN SYSTÈME ATOMIQUE PILOTÉ PAR UN CHAMP FORT. CAS DE SYSTÈMES À DEUX ET TROIS NIVEAUX

Dans le chapitre II nous avons d'une part vu le rôle très important joué par le champ rayonné dans les phénomènes de propagation. C'est le champ rayonné qui est responsable des modifications du profil temporel des impulsions transmises. Quand le champ incident et le champ rayonné se superposent temporellement, il y a apparition d'un battement. En effet ces deux champs ne possèdent pas toujours la même fréquence : le champ rayonné est émis à la fréquence de transition du dipôle atomique, et le champ incident possède sa propre phase temporelle. Nous avons vu ceci en particulier dans le cas des impulsions à dérive de fréquence en champ faible, où il y a un recouvrement temporel important entre le champ incident et le champ rayonné. La modulation est donnée par le battement entre la fréquence instantanée du champ incident et celle constante du champ rayonné. D'autre part nous avons montré qu'une impulsion limitée par transformée de Fourier, résonante et suffisamment intense, se propage quasiment sans déformation. Ceci est d'autant plus vrai lorsque les impulsions sont non résonantes. De telles impulsions intenses peuvent alors être utilisées pour induire et contrôler, à l'échelle de l'échantillon et sans déformation, des modifications sur la réponse du système à une impulsion faible et résonante.

Ici dans ce chapitre, nous allons illustrer à l'aide de deux exemples, l'idée qui consiste à modifier de manière contrôlée la réponse du système à l'aide d'une impulsion intense. Premièrement nous analyserons théoriquement et numériquement, la propagation d'une impulsion faible dans un système à trois niveaux piloté par une impulsion forte. En analysant la dynamique des populations sous l'action simultanée des deux champs, nous montrerons l'apparition de deux effets. Le premier effet concerne le phénomène de blocage du transfert de population sur la transition sondée. Le blocage apparaît sous l'action du *déplacement lumineux transitoire* (ou *effet Stark transitoire*) induit par le champ de contrôle. Nous montrerons que ce blocage implique une diminution très efficace du champ rayonné aux temps longs. Le deuxième effet concerne l'apparition d'une modulation sur le profil d'intensité de l'impulsion transmise. La durée caractéristique de cette modulation est inférieure à la durée limitée par transformée de Fourier de l'impulsion faible. Cette modulation pourra être interprétée aussi bien dans le domaine temporel que dans le domaine spectral. Dans le domaine temporel, l'interprétation en terme de battement entre champ incident et champ

rayonné révélera une analogie avec la propagation des impulsions à dérive de fréquence. Le phénomène apparaîtra dans le domaine spectral comme des franges de type franges de Ramsey.

Deuxièmement, nous verrons le cas d'un système à deux niveaux sous excitation "bichromatique". En plus des déplacements lumineux, le champ fort, qui excite de manière non résonante la même transition que celle sondée par le champ faible, est susceptible d'induire des transitions *non adiabatiques*. A travers l'étude de différentes configurations géométriques et temporelles, nous verrons qu'il est possible de découpler les différents phénomènes physiques impliqués. Lorsque nous considérerons les déplacements lumineux, nous trouverons une situation analogue au système à trois niveaux. Quant aux transitions non adiabatiques, nous verrons que l'excitation par une impulsion faible résonante peut alors être un outil puissant pour mettre en avant ces phénomènes parfois ténus [77].

Nous présenterons enfin des résultats expérimentaux relatifs à l'excitation "bichromatique". Ces résultats sont obtenus pour des puissances laser limitées, dans une vapeur de rubidium avec des impulsions issues du façonneur. Ils portent sur l'étude spectrale du phénomène. Nous discuterons de l'apparition de la fréquence image et de la dissymétrie qui existe sur le spectre transmis de l'impulsion faible.

## IV.1 Système à 3 niveaux en $\Xi$

L'interaction entre un système à trois niveaux (en  $V$ ,  $\Lambda$  ou  $\Xi$ ) et un couple d'impulsions lasers constitué d'un champ faible et d'un champ fort, conduit à une grande variété de phénomènes physiques [17, 78–81]. Dans la plupart des cas, le champ fort est une impulsion laser longue qui prépare le système atomique dans un état habillé quasi-stationnaire. Le champ faible agit alors sur le système "atome plus champ". On peut voir ces situations comme des expériences pompe-sonde, où le champ faible sonde la réponse effective du système, modifiée par la présence du champ fort. Un des exemples les plus remarquables est celui de la transparence électromagnétiquement induite (EIT) [18–20, 82]. En configuration d'EIT, la propagation de l'impulsion faible est radicalement modifiée : cet effet se manifeste par un ralentissement très important de la vitesse de propagation de l'impulsion faible et s'accompagne de la formation d'une fenêtre de transparence dans le domaine spectral. Il est également possible d'extraire la phase dynamique du champ fort à partir du déplacement lumineux quand la durée de l'impulsion sonde est au moins aussi courte qu'une demi-période du champ fort [83].

Toutefois quand l'action du champ fort est dépendante du temps, le champ faible sonde alors la dynamique transitoire induite par le champ fort. On ne peut donc plus décrire l'interaction "atome plus champ" par une fonction réponse invariante dans le temps. Considérons un champ fort qui induit un déplacement lumineux (déplacement Stark dynamique) sur un des états liés d'une transition optique dont l'autre état est laissé non perturbé. Des oscillations de types franges de Ramsey apparaissent alors dans le spectre de l'impulsion faible qui sonde cette transition [84]. Quand l'impulsion forte a une durée plus courte mais comparable à celle de l'impulsion faible, on ne peut plus considérer l'effet du champ fort comme invariant dans le temps et l'image "pompe-sonde" n'est plus correcte. Les phénomènes transitoires dominent la dynamique pendant l'action du champ faible.

Nous allons nous intéresser à ces effets transitoires qui affectent une impulsion faible se propageant dans un milieu perturbé par un champ fort.

### IV.1.1 Description du système dans la base stationnaire

On se place dans un système à trois niveaux en échelle ( $\Xi$ ), dont la fonction d'onde est définie comme :

$$|\psi\rangle = a(z, t) |a\rangle + b(z, t)e^{-i\omega_{LW}t} |b\rangle + c(z, t)e^{-i(\omega_{LW} + \omega_{LS})t} |c\rangle$$

Le champ faible  $E_W$  connecte l'état fondamental  $|a\rangle$  à l'état excité  $|b\rangle$ . La fréquence  $\omega_{LW}$  du champ faible est résonante avec la fréquence  $\omega_{ab}$  de la transition. Un troisième état  $|c\rangle$  est connecté de manière non résonante à l'état  $|b\rangle$  par le champ fort  $E_S$ . La fréquence du champ fort est désaccordée de la quantité  $\omega_{bc} - \omega_{LS}$ , par rapport à la transition  $|b\rangle \rightarrow |c\rangle$  (figure IV.1).

Le hamiltonien du système s'écrit  $H = H_0 + V_{dip}$ , où  $H_0$  est le hamiltonien du système non perturbé, et  $V_{dip} = -\hat{\mu}E_{tot} = -(\hat{\mu}_{ab} + \hat{\mu}_{bc})(E_W + E_S)$  l'interaction atome-champ dans l'approximation dipolaire électrique. On considère que les énergies de transition et les fréquences centrales des lasers sont telles que l'on peut écrire  $V_{dip} \simeq -\hat{\mu}_{ab}E_W - \hat{\mu}_{bc}E_S$ . Cela revient à considérer que le champ faible n'agit que sur la transition  $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ , et que le champ fort est suffisamment hors résonance par rapport à cette transition pour que seule son action sur la transition  $|b\rangle \rightarrow |c\rangle$  joue un rôle important. Les champs électriques sont définis par  $E_W = (A_W e^{-i\omega_{LW}t} + c.c.)/2$  et  $E_S = (A_S e^{-i\omega_{LS}t} + c.c.)/2$ . Sous ces hypothèses et en ne conservant que les termes RWA, l'évolution des amplitudes obéit à :

$$i\hbar\partial_t \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -\mu_{ab}A_W^*/2 & 0 \\ -\mu_{ab}A_W/2 & 0 & -\mu_{bc}A_S^*/2 \\ 0 & -\mu_{bc}A_S/2 & \hbar(\omega_{bc} - \omega_{LS}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \end{pmatrix} \quad (\text{IV.1})$$

Quant à l'évolution du champ faible, elle suit l'équation de propagation :

$$\frac{\mu_{ab}}{\hbar} \left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) A_W = i\alpha_0 \Delta_D a^* b \quad (\text{IV.2})$$

pour un milieu d'épaisseur optique  $\alpha_0 L$  et caractérisé par une largeur Doppler  $\Delta_D$ .

Nous pouvons réécrire le système d'équations précédent en utilisant les variables réduites sans dimension :

$$T = \frac{1}{\tau_W} \left( t - \frac{z}{c} \right) \quad ; \quad Z = \frac{z}{L}$$

où  $\tau_W$  est la durée du champ faible et  $L$  la longueur du milieu. Nous introduisons également

$$\theta_W = \frac{\mu_{ab}}{\hbar} A_{W,0} \sqrt{\pi} \tau_W \quad ; \quad \theta_S = \frac{\mu_{bc}}{\hbar} A_{S,0} \sqrt{\pi} \tau_S$$

qui désignent les angles de Rabi pris respectivement sur les transitions  $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$  et  $|b\rangle \rightarrow |c\rangle$ . On désigne par  $A_{W,0}$  ( resp.  $A_{S,0}$ ) l'amplitude maximale du champ faible ( resp. du champ

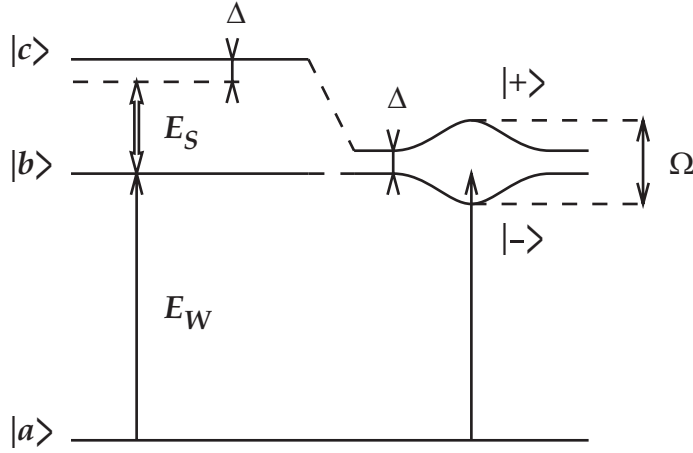


FIG. IV.1 – Système à trois niveaux en  $\Xi$  : Le champ faible connecte  $|a\rangle$  et  $|b\rangle$ . Le champ fort qui connecte  $|b\rangle$  et  $|c\rangle$  est désaccordé de  $\Delta$  par rapport à la pulsation  $\omega_{bc}$  de la transition. Les états adiabatiques  $|\pm\rangle$  sont déplacés par effet Stark dynamique. L'écart correspond à la pulsation de Rabi généralisée  $\Omega$ .

fort) <sup>a</sup>. Dans tout ce qui suit nous supposons  $\tau_W \geq \tau_S$ . Afin de ne pas alourdir les équations, nous ne noterons les dépendances en  $Z$  et  $T$  que si cela est nécessaire pour la discussion et/ou la compréhension des phénomènes.

Le système d'équations de Maxwell-Schrödinger s'écrit alors

$$i\partial_T \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \end{pmatrix} = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \theta_W f_W^* & 0 \\ \theta_W f_W & \boxed{0 \quad \theta_S f_S \tau_{WS}} \\ 0 & \theta_S f_S \tau_{WS} & -2\Delta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \end{pmatrix} \quad (\text{IV.3})$$

$$\partial_Z f_W = i \frac{e_{\text{disp}}}{\theta_W} a^* b \quad (\text{IV.4})$$

où  $f_W$  et  $f_S$  sont les enveloppes des champs <sup>b</sup>,  $e_{\text{disp}} = \alpha_0 L \Delta_D \tau_W$  qui caractérise l'importance des effets de propagation,  $\Delta = (\omega_{bc} - \omega_{L_S}) \tau_W$  et  $\tau_{WS} = \tau_W / \tau_S$  est le rapport entre la durée de l'impulsion faible et la durée de l'impulsion forte.

Nous ne traiterons pas l'équation de propagation du champ fort. En effet, le champ faible n'induit pas de transfert de population important vers les états  $|b\rangle$  et  $|c\rangle$ , et de ce fait l'amplitude du dipôle susceptible de modifier le champ fort est négligeable. D'autre part comme le champ  $A_S$  est fort et non résonant, cela conduit également à une amplitude de dipôle négligeable (même de manière transitoire), et l'approximation qui consiste à garder le champ fort comme inchangé au cours de la propagation est donc doublement justifiée. Dans tous les résultats de simulations que nous allons présenter la propagation du champ fort est prise en compte explicitement afin de ne pas restreindre l'étude. Cependant, sous les hypothèses de travail précédentes, la propagation du champ fort ne modifie pas les résultats de manière importante.

<sup>a</sup>Avec cette définition les champs s'écrivent  $A_W = A_{W,0} \sqrt{\pi} f_W(Z, T)$  et  $A_S = A_{S,0} \sqrt{\pi} f_S(Z, T)$

<sup>b</sup>Les enveloppes  $f_{i=W,S}$  sont définies telles que  $\int_T f_i dT = 1$

### IV.1.2 Base adiabatique

Comme nous l'avons déjà vu pour le cas des impulsions à dérive de fréquence, les modifications de profil temporel au cours de la propagation sont essentiellement dues au battement entre le champ rayonné et le champ incident. Les propriétés du champ rayonné sont liées à celles du dipôle "sondé" par l'impulsion qui se propage. Les propriétés de ce dipôle sont elles-mêmes reliées à l'évolution des deux états de la transition, en particulier lorsque des déplacements lumineux entrent en jeu comme dans le cas qui nous intéresse. Afin d'étudier les modifications des propriétés du dipôle, il apparaît naturel de se placer dans la base adiabatique liée au champ fort et pouvoir calculer plus simplement les quantités atomiques. Nous allons donc diagonaliser le bloc matérialisé par un rectangle dans l'équation IV.3. Nous appliquons le changement de base usuel :

$$\begin{pmatrix} a \\ \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \theta & \sin \theta \\ 0 & -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \end{pmatrix} \quad (\text{IV.5})$$

où l'angle de mélange  $\theta$  est donné par :

$$\tan 2\theta(T) = \tau_{WS} \frac{\theta_S}{\Delta} f_S(0, T) \quad (\text{IV.6})$$

Les amplitudes  $a$ ,  $\alpha_+$  et  $\alpha_-$  satisfont alors à :

$$i\partial_T \begin{pmatrix} a \\ \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{1}{2}\theta_W f_W^* \cos \theta & \frac{1}{2}\theta_W f_W^* \sin \theta \\ -\frac{1}{2}\theta_W f_W \cos \theta & \Omega_- & i\dot{\theta} \\ \frac{1}{2}\theta_W f_W \sin \theta & -i\dot{\theta} & \Omega_+ \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} \quad (\text{IV.7})$$

La fonction d'onde associée à l'hamiltonien dans la nouvelle base s'écrit  $|\psi\rangle = a|a\rangle + \alpha_+|+\rangle + \alpha_-|-\rangle$ . Les termes diagonaux  $\Omega_{\pm} = (\Delta \pm \Omega)/2$  sont les énergies dépendantes du temps des états  $|\pm\rangle$ , avec  $\Omega = \sqrt{\Delta^2 + \tau_{WS}^2 \theta_S^2 f_S^2}$  la pulsation de Rabi généralisée. Asymptotiquement ( $T = \pm\infty$ ), l'état adiabatique  $|-\rangle$  (resp.  $|+\rangle$ ) coïncide avec l'état stationnaire  $|b\rangle$  (resp.  $|c\rangle$ ). Le terme  $\dot{\theta} = \partial_T \theta$  est responsable des transitions non adiabatiques de  $|b\rangle$  vers  $|c\rangle$ , induites par le champ fort. L'évolution adiabatique du système a lieu quand :

$$\frac{\dot{\theta}}{\Omega_+ - \Omega_-} = \frac{\tau_{WS} \theta_S \Delta \dot{f}_S}{2 \Omega^3} \ll 1 \quad (\text{IV.8})$$

Cette condition est vérifiée pour des grands désaccords en fréquence  $\Delta$  et/ou pour des champs suffisamment intenses ( $\theta_S f_S \gg \Delta/\tau_{WS}$ ) et nous nous placerons dans cette situation. Par ailleurs, du point de vue du champ faible, le désaccord  $\Delta$  doit être suffisamment important de sorte que l'état  $|+\rangle$  soit situé en dehors du spectre de cette impulsion (*cf* figure IV.1).

### IV.1.3 Sonde faible et résonante

L'intensité du champ faible est supposée telle que le système est peu affecté  $a \simeq 1$ . Nous allons donc traiter le problème de manière perturbative. Sous cette hypothèse les équations de Maxwell-Schrödinger se réduisent à :

$$\begin{cases} i\partial_T\alpha_- \simeq -\frac{1}{2}\theta_W f_W \cos\theta + \Omega_-\alpha_- \\ i\partial_T\alpha_+ \simeq \frac{1}{2}\theta_W f_W \sin\theta + \Omega_+\alpha_+ \end{cases} \quad (\text{IV.9})$$

et

$$\partial_Z f_W \simeq i\frac{e^{\text{disp}}}{\theta_W} b = i\frac{e^{\text{disp}}}{\theta_W} (\alpha_- \cos\theta - \alpha_+ \sin\theta) \quad (\text{IV.10})$$

Si on se place dans le régime des faibles épaisseurs optique, le champ rayonné est faible. Le champ vu par les atomes est peu différent du champ incident, on a  $f_W(Z, T) \approx f_W(0, T)$  et l'équation IV.10 s'intègre immédiatement. Le champ rayonné peut donc être évalué directement à partir des amplitudes de probabilité calculées à l'entrée du milieu, qui sont les solutions de IV.9.

#### IV.1.4 Comportement initial des populations à l'entrée $Z = 0$

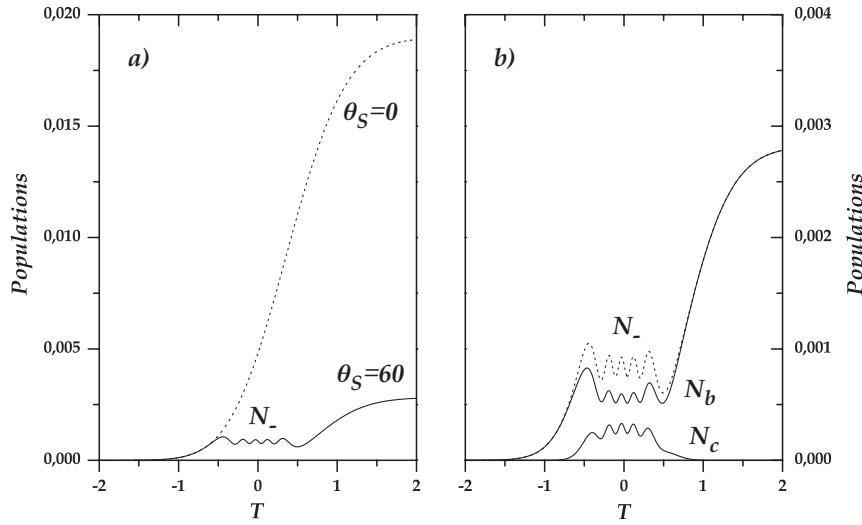


FIG. IV.2 – Allure temporelle des populations : La figure a) représente la population  $N_-$  avec et sans champ fort. Pour  $\theta_S = 60$ ,  $\theta_W = 0, 15$  et  $\tau_{WS} = 2$ ,  $\Delta = 20$ . Le blocage de population est induit par le champ fort et  $N_-$  présente un plateau constant. En plus du plateau, on note la présence d'oscillations autour de la valeur moyenne du plateau. Les populations  $N_b$  et  $N_c$  sont représentées sur la figure b). Lorsque le champ fort diminue, le blocage cesse et la population  $N_-$  ( $N_b$ ) poursuit sa croissance sous l'action du champ faible.

La figure IV.2 illustre le comportement temporel des populations  $N_-$ ,  $N_b$  et  $N_c$  calculées à l'entrée du milieu pour  $\theta_S = 60$ ,  $\theta_W = 0, 15$  et  $\tau_{WS} = 2$ ,  $\Delta = 20$ . Pour comparaison, nous avons représenté en pointillés le cas  $\theta_S = 0$  : la population  $N_-$  croît sur une durée de l'ordre de  $\tau_W$  pour atteindre sa valeur asymptotique. Quand le champ fort n'agit pas pour  $T < -1/2$  ( $\tau_{WS}^{-1} = 1/2$ ), la population  $N_-$  (figure IV.2.a) varie de la même manière que pour  $\theta_S = 0$ . Lorsque l'amplitude du champ fort est suffisamment intense ( $-1/2 < T < 1/2$ ), la population  $N_-$  oscille autour d'un plateau sensiblement constant. Une fois le champ fort

dissipé ( $T > 1/2$ ), la population continue d'augmenter pour atteindre une valeur asymptotique très nettement inférieure à celle obtenue en l'absence de champ fort ( $\theta_S = 0$ ). Les populations  $N_b$  et  $N_c$  (figure IV.2.b) sont données à partir de la relation IV.5. La population  $N_b$  a un comportement similaire à celui de  $N_-$ , excepté sur l'intervalle  $[-1/2; 1/2]$  où elle oscille autour d'une valeur inférieure à celle du plateau de  $N_-$ . La population  $N_c$ , qui est identiquement nulle quand  $\theta_S = 0$ , présente des valeurs importantes uniquement pour  $-1/2 < T < 1/2$ . Elle montre également le même type d'oscillations. Les oscillations visibles sur  $N_b$  et  $N_c$  sont en phase. Il ne peut donc en aucun cas s'agir d'oscillations de Rabi induites par le champ fort sur la transition  $|b\rangle \rightarrow |c\rangle$ . De plus ces oscillations sont identiques à celles de  $N_-$ . Nous sommes donc en présence des deux phénomènes suivants : tout d'abord sous l'action du champ fort, il existe un blocage du transfert de population vers l'état  $|-\rangle$  qui se traduit par un plateau constant. Ensuite, les populations présentent toutes des oscillations sur la durée totale de ce plateau.

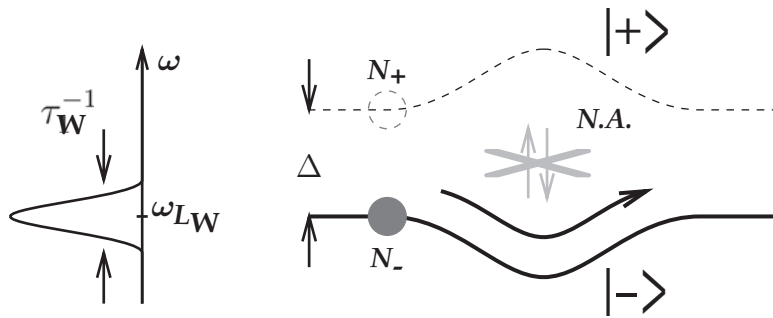


FIG. IV.3 – Evolution du système sur la branche d'énergie  $\Omega_-$  : Le champ faible ne crée qu'une population  $N_-$  initialement dans l'état  $|-\rangle$  ( $N_+ \simeq 0$ ). Il n'y a pas de transition non adiabatique (N.A.) et le système évolue uniquement sur la branche  $\Omega_-$ .

Afin de comprendre ce comportement, analysons les solutions de l'équation IV.9 données par :

$$\alpha_-(T) = i \frac{\theta_W}{2} \int_{-\infty}^T f_W(0, T') \cos \theta(T') \exp \left( -i \int_{T'}^T \Omega_-(T'') dT'' \right) dT' \quad (\text{IV.11a})$$

$$\alpha_+(T) = -i \frac{\theta_W}{2} \int_{-\infty}^T f_W(0, T') \sin \theta(T') \exp \left( -i \int_{T'}^T \Omega_+(T'') dT'' \right) dT' \quad (\text{IV.11b})$$

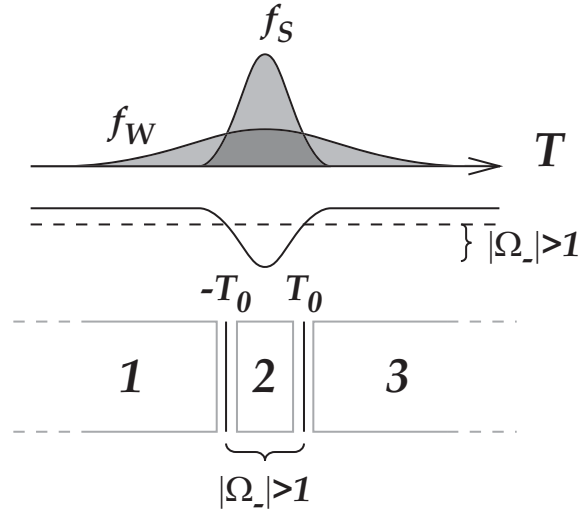
Dans la mesure où nous avons supposé une évolution adiabatique du système, et que par ailleurs le champ faible n'est résonant qu'avec l'état  $|-\rangle$  (c'est-à-dire  $\Delta \gg 1$ ), seuls les transferts de population vers cet état se font de manière efficace. En conséquence, nous avons  $N_+ = |\alpha_+|^2 \simeq 0$ . Les amplitudes  $b$  et  $c$  sont alors entièrement déterminées à partir de  $\alpha_-$  (relation IV.5), par l'intégrale IV.11a. Pour évaluer cette intégrale, nous allons procéder au calcul sur trois intervalles de temps successifs  $I_1 = ]-\infty ; T_0]$ ,  $I_2 = [-T_0 ; T_0]$  et

$I_3 = [T_0 ; +\infty[$ . L'intervalle  $I_2$  est donnée par les solutions  $\varepsilon$  de  $|\Omega_-(\pm T_0)| \geq 1$  (figure IV.4). Le déplacement lumineux induit par le champ fort est important pendant cette durée, et son action sera supposée essentiellement limitée à cette zone pour des valeurs de  $\theta_W$  importantes. L'amplitude  $\alpha_-$  de l'état adiabatique  $|-\rangle$  est définie respectivement sur chacun de ces intervalles de temps par  $\alpha_-^{(1)}(T) = \tilde{\alpha}_-^{(1)}(T)e^{-i\phi_S(T)}$  puis  $\alpha_-^{(2)}(T) = \tilde{\alpha}_-^{(2)}(T)e^{-i\phi_S(T)}$  et  $\alpha_-^{(3)}(T) = \tilde{\alpha}_-^{(3)}(T)e^{-i\phi_S(T)}$  où

$$\boxed{\phi_S(T) = \int_{-\infty}^T \Omega_-(T')dT'} \quad (\text{IV.12})$$

est l'intégrale du déplacement Stark (nous l'appellerons "intégrale Stark"). Nous verrons plus loin la signification physique de cette quantité dont le rôle est important pour expliquer les profils temporels et spectraux des impulsions après propagation.

FIG. IV.4 – Définition des intervalles de temps  $I_1$ ,  $I_2$  et  $I_3$  : Les intervalles de temps sont définis à partir de la condition  $|\Omega_-(\pm T_0)| \geq 1$ . Dans la zone 1, seul le champ faible  $f_W$  agit et transfère de la population vers l'état  $|-\rangle$ . L'effet du déplacement lumineux induit par  $f_S$  est localisée sur l'intervalle  $[-T_0 ; T_0]$ . Dans la zone 3, le système continue d'évoluer sous l'action de  $f_W$  et le transfert de population se poursuit.



Sur l'intervalle  $I_1$ , on a  $\Omega_-(T) \simeq 0$  (soit  $\phi_S(T) \simeq 0$ ) et en dehors de l'intervalle  $I_2$  l'angle de mélange est nul ( $\cos \theta \simeq 1$ ). Les amplitudes sont alors données par :

$$\tilde{\alpha}_-^{(1)}(T) = i\frac{\theta_W}{2} \int_{-\infty}^{T \leq -T_0} f_W(T') \cos \theta(T') dT' \simeq i\frac{\theta_W}{2} \int_{-\infty}^{T \leq -T_0} f_W(T') dT' \quad (\text{IV.13a})$$

$$\tilde{\alpha}_-^{(2)}(T) = \tilde{\alpha}_-^{(1)}(-T_0) + i\frac{\theta_W}{2} \int_{-T_0}^{T \leq T_0} f_W(T') \cos \theta(T') e^{i \int_{-T_0}^{T'} \Omega_-(T'') dT''} dT' \quad (\text{IV.13b})$$

$$\tilde{\alpha}_-^{(3)}(T) = \tilde{\alpha}_-^{(2)}(T_0) + i\frac{\theta_W}{2} \int_{T_0}^{T \geq T_0} f_W(T') dT' \quad (\text{IV.13c})$$

<sup>ε</sup>Cette condition revient à considérer que l'état  $|-\rangle$  est déplacé en dehors du spectre de l'impulsion faible



Pour  $-\infty < T \leq -T_0$ , avant l'action du champ fort, l'état  $|-\rangle$  est identique à l'état  $|b\rangle$ . La relation IV.13a donne un comportement de  $N_-$  identique à celui observé pour  $N_b$  dans le cas d'un champ faible agissant seul. Pour  $-T_0 \leq T \leq T_0$ , le champ fort provoque un déplacement important de l'état  $|-\rangle$  qui se retrouve rejeté hors du spectre de l'impulsion faible. Le transfert de population est alors fortement diminué. Cependant, même si elle est faible, l'excitation non résonante due au champ faible contribue de manière non négligeable à l'amplitude totale de l'état  $|-\rangle$ . Cette contribution donnée par (cf relation IV.13b) :

$$i\frac{\theta_W}{2} \int_{-T_0}^{T \leq T_0} f_W(T') \cos \theta(T') e^{i \int_{-T_0}^{T'} \Omega_-(T'') dT''} dT'$$

interfère avec l'amplitude  $\tilde{\alpha}_-^{(1)}(-T_0)$  déjà transférée à  $T = -T_0$ . Des oscillations apparaissent alors sur le profil temporel de  $N_-$ . Comme l'état  $|-\rangle$  est un mélange des deux états  $|b\rangle$  et  $|c\rangle$ , ces interférences analogues aux transitoires cohérents [30], apparaissent également sur les populations  $N_b$  et  $N_c$  de ces états. Il s'agit d'un phénomène transitoire qui affecte la population sur la durée du plateau, mais ne contribue pas à modifier le bilan net de la population effectivement transférée. En effet, après l'action du champ fort, la population transférée est donnée par <sup>d</sup> :

$$\tilde{\alpha}_-^{(2)}(T_0) \simeq \tilde{\alpha}_-^{(1)}(-T_0) \quad (\text{IV.15})$$

En plus de l'apparition du plateau, le blocage de population a pour conséquence d'induire un changement drastique dans la valeur asymptotique de la population transférée dans l'état excité. En effet, en présence du champ fort, comme l'état  $|-\rangle$  est déplacé et que le champ faible interagit avec le système de manière non résonante, l'excitation et le transfert de population sont moins efficaces. Il en résulte une baisse de la probabilité d'excitation. Dans le cas où seul le champ faible interagit, la population asymptotique est donnée par :

$$N_-^{(0)} = \theta_W^2/4 \quad (\text{IV.16})$$

En présence du champ fort, cette population est alors donnée par :

$$N_- \simeq N_-^{(0)} \left( 1 - \int_{-T_0}^{T_0} f_W(T') dT' \right)^2 \quad (\text{IV.17})$$

---

<sup>d</sup> Dès que le champ fort est intense, l'angle de mélange tend rapidement vers  $\pi/4$  et  $\cos \theta$  est indépendant du temps, et les intégrales de la forme  $\int_{-T_0}^{T' \leq T_0} \Omega_-(T'') dT''$  peuvent être linéarisées par  $\Omega_-^{(0)}(T' + T_0)$  où  $\Omega_-^{(0)} = \Omega_-(T = 0)$ . L'intégrale de la contribution transitoire au second membre de l'équation IV.13b est alors sensiblement égale :

$$\int_{-T_0}^{T_0} f_W(T') e^{i \int_{-T_0}^{T'} \Omega_-(T'') dT''} dT' \simeq \mathcal{F}[f_W(T)]_{(\omega=\Omega_-^{(0)})} = 0 \quad (\text{IV.14})$$

c'est-à-dire à la transformée de Fourier de  $f_W$  évaluée en  $\Omega_-^{(0)}$ . Dans la mesure où le déplacement est important cette transformée de Fourier est nulle car évaluée en dehors du spectre de l'impulsion faible

Comme entre deux instants  $T_a$  et  $T_b \geq T_a$  quelconques, nous avons

$$0 \leq \int_{T_a}^{T_b} f_W(T') dT' \leq 1$$

nous pouvons immédiatement en déduire d'après IV.17 que  $N_- \leq N_-^{(0)}$ . Lorsque l'on effectue la simulation pour  $\theta_S = 60$ , la valeur asymptotique est diminuée de près d'un ordre de grandeur (IV.2). Nous allons maintenant examiner les conséquences de ces effets sur la propagation du champ faible. Nous allons voir que cette diminution de la population transférée a pour conséquence d'affecter dans le même sens l'amplitude du champ rayonné.

### IV.1.5 Effets sur la propagation

Nous avons établi que sous l'action du champ fort la population transférée dans l'état  $|b\rangle$  subit un blocage (équation IV.15) et que ce blocage se traduit par une diminution importante de la population transférée à la fin de l'impulsion (équation IV.17). Par ailleurs, en utilisant IV.10, nous pouvons approximer à l'ordre le plus bas l'expression de l'enveloppe du champ faible après propagation ( $Z = 1(z = L)$ ) par :

$$f_W(Z = 1, T) = f_W(Z = 0, T) + f_{\text{rad}}(T) \quad (\text{IV.18})$$

où

$$f_{\text{rad}}(T) \simeq i \frac{e_{\text{disp}}}{\theta_W} \alpha_-(0, T) \cos \theta(T) \quad (\text{IV.19})$$

est le champ rayonné <sup>ε</sup>. Cette expression du champ rayonné montre, qu'excepté le terme  $\cos \theta$  lentement variable, le champ rayonné présente les mêmes caractéristiques que  $\alpha_-(0, T)$ .

La figure IV.5 présente l'amplitude du champ rayonné pour trois intensités différentes du champ fort  $\theta_S = 0$ ,  $\theta_S = 38$  et  $\theta_S = 60$ . Le champ rayonné est calculé en effectuant la différence entre champ transmis et le champ incident représenté en traits pointillés. Pour plus de visibilité l'amplitude du champ rayonné est dans les trois cas multipliée par un facteur numérique (ici  $\times 3$ ). Dans ces trois cas de figures, le champ rayonné présente avant l'action du champ fort, le même comportement temporel. Pendant la durée d'action du champ fort, i.e. pour  $-T_0 \leq T \leq T_0$ , le phénomène de blocage de population apparaît sur le champ rayonné qui présente alors un plateau. Sur l'intervalle  $[-T_0; T_0]$ , le champ rayonné s'écrit :

$$f_{\text{rad}} = i e_{\text{disp}} \alpha_-^{(2)}(T) \cos \theta(T) / \theta_W \quad (\text{IV.20})$$

En utilisant la relation IV.13 et la définition de  $\alpha_-^{(2)}(T) = \tilde{\alpha}_-^{(2)}(T) e^{-i\phi_S(T)}$ , nous pouvons alors écrire le champ rayonné sous la forme :

$$f_{\text{rad}} = f_{\text{rad}}^{\text{r}} + f_{\text{rad}}^{\text{nr}} \quad (\text{IV.21})$$

---

<sup>ε</sup> Comme nous l'avons déjà vu dans le chapitre II à la relation II.83, on peut être plus précis sur la forme du champ rayonné. On peut tenir compte de la fonction réponse  $R_L(t)$  (définition II.57 ou II.64) qui est lentement variable quand  $e_{\text{disp}} \ll 1$ . Elle donne le comportement du champ rayonné à temps long.

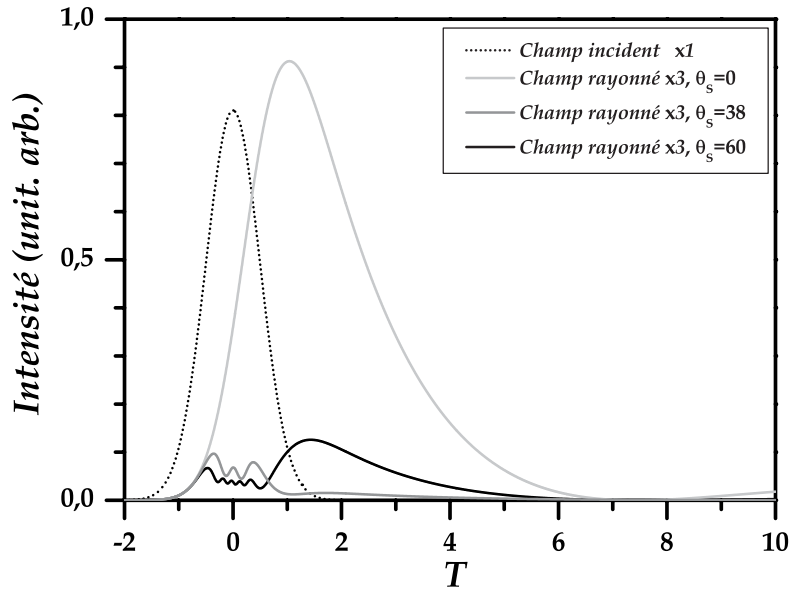


FIG. IV.5 – Champ rayonné par le système ( $e_{\text{disp}} = 1$ ,  $\theta_W = 0,15$  et  $\tau_{WS} = 2$ ,  $\Delta = 20$ ) : Quand l'intensité du champ fort augmente, le champ rayonné par le système est fortement réduit par rapport au cas  $\theta_S = 0$ . Pour plus de visibilité les intensités rayonnées sont multipliées par 3.

où les parties résonante  $f_{\text{rad}}^r$  et non résonante  $f_{\text{rad}}^{\text{nr}}$  du champ sont définies à partir des relations IV.13a, IV.13b et IV.19 comme :

$$f_{\text{rad}}^r = -\frac{e_{\text{disp}}}{2} \cos \theta(T) e^{-i\phi_S(T)} \int_{-\infty}^{-T_0} f_W(T') \cos \theta(T') dT' \quad (\text{IV.22})$$

$$f_{\text{rad}}^{\text{nr}} = -\frac{e_{\text{disp}}}{2} \cos \theta(T) e^{-i\phi_S(T)} \int_{-T_0}^{T \leq T_0} f_W(T') \cos \theta(T') e^{i \int_{-T_0}^{T'} \Omega_-(T'') dT''} dT' \quad (\text{IV.23})$$

Comme nous l'avons discuté précédemment, le blocage s'accompagne également d'oscillations sur la population  $N_-$  dues à l'interférence entre contribution résonante et non résonante de la population transférée dans l'état  $|-\rangle$ . De la même manière, on retrouve ces oscillations sur le profil temporel du champ rayonné. La composante  $f_{\text{rad}}^{\text{nr}}$ , bien que faible, interfère avec  $f_{\text{rad}}^r$  et conduit à l'apparition des oscillations.

À la fin de l'impulsion, le champ rayonné est fortement réduit. En effet, pour  $T \geq T_0$ , le champ rayonné s'écrit :

$$f_{\text{rad}} = i e_{\text{disp}} \alpha_-^{(3)}(T) \cos \theta(T) / \theta_W$$

En utilisant les relations IV.13a, IV.13c et IV.15, on obtient :

$$f_{\text{rad}} = -\frac{e_{\text{disp}}}{2} \cos \theta(T) e^{-i\phi_S(T)} \left( \int_{-\infty}^{-T_0} f_W(T') dT' + \int_{T_0}^{T \geq T_0} f_W(T') dT' \right) \quad (\text{IV.24})$$

Le terme entre parenthèses peut s'écrire également :

$$\left( \int_{-\infty}^{T \geq T_0} f_W(T') dT' - \int_{-T_0}^{T_0} f_W(T') dT' \right)$$

Le premier terme est l'aire tronquée de l'impulsion. Le deuxième terme est l'aire de l'impulsion sur l'intervalle  $[-T_0; T_0]$ . Pour  $T_0$  suffisamment grand de l'ordre de quelques  $\tau_W$ , c'est-à-dire pour un champ de contrôle suffisamment intense, les deux termes s'annulent et  $f_{\text{rad}}$  tend rapidement vers zéro.

**NB** : On peut noter sur la figure IV.5, que pour  $\theta_S = 38$ , le champ rayonné est plus efficacement réduit que pour  $\theta_S = 60$ . Cette situation correspond au fait que pour  $\theta_S = 38$ , le déplacement du niveau est moins important. Les composantes résonantes et non résonantes, qui ne sont alors plus négligeables, interfèrent dans ce cas destructivement et conduisent de manière fortuite à une diminution plus importante que pour  $\theta_S = 60$ .

Examinons maintenant les conséquences des déplacements lumineux sur le profil temporel de l'intensité totale transmise. La figure IV.6 représente l'intensité transmise de l'impulsion faible pour  $\theta_S = 0$ ,  $\theta_S = 38$  et  $\theta_S = 60$ . Sous l'effet du blocage de population, le champ rayonné pour  $T \geq T_0$  après l'action du champ fort est fortement diminué. La queue de dispersion, initialement présente pour  $\theta_S = 0$ , est alors réduite de manière importante, comme on peut le voir également sur les figures IV.5 et IV.8c. En l'absence de champ de contrôle ( $\theta_S = 0$ ), l'énergie lumineuse de l'impulsion faible est étalée temporellement par la dispersion. Quand le champ fort est appliqué ( $\theta_S \neq 0$ ), cette énergie est "recomprimée" au voisinage du temps zéro sur une durée comparable à la durée de l'impulsion faible. De manière remarquable, des modulations, dont la durée caractéristique est inférieure à la durée de l'impulsion initiale, apparaissent simultanément sur le profil temporel de l'intensité transmise. La présence de ces oscillations, montre que le processus de recompression de l'impulsion diffère d'une simple annulation des effets de dispersion. Analysons l'origine de ces oscillations, qui comme nous allons le voir, diffèrent de celles observées sur l'intensité du champ rayonné.

En utilisant les relations IV.18, IV.20 et IV.13b, et le fait que l'intensité du champ rayonné est très faible devant l'intensité du champ incident, l'intensité de l'impulsion transmise s'écrit pour  $-T_0 \leq T \leq T_0$  :

$$\begin{aligned} I_1(T) &= |f_W(Z = L, T)|^2 \\ &\approx I_0(T) + 2f_W(0, T) \text{Re} (f_{\text{rad}}^r + f_{\text{rad}}^{\text{nr}}) \end{aligned} \quad (\text{IV.25})$$

où  $I_0(T) = |f_W(Z = 0, T)|^2$ . Finalement, puisque la contribution  $f_{\text{rad}}^{\text{nr}}$  est faible par rapport à  $f_{\text{rad}}^r$ , l'intensité transmise s'écrit en utilisant la relation IV.22 :

$$I_1(T) = I_0(T) - e_{\text{disp}} f_W(0, T) \cos \theta(T) \cos \phi_S(T) \int_{-\infty}^{-T_0} f_W(0, T') \cos \theta(T') dT' \quad (\text{IV.26})$$

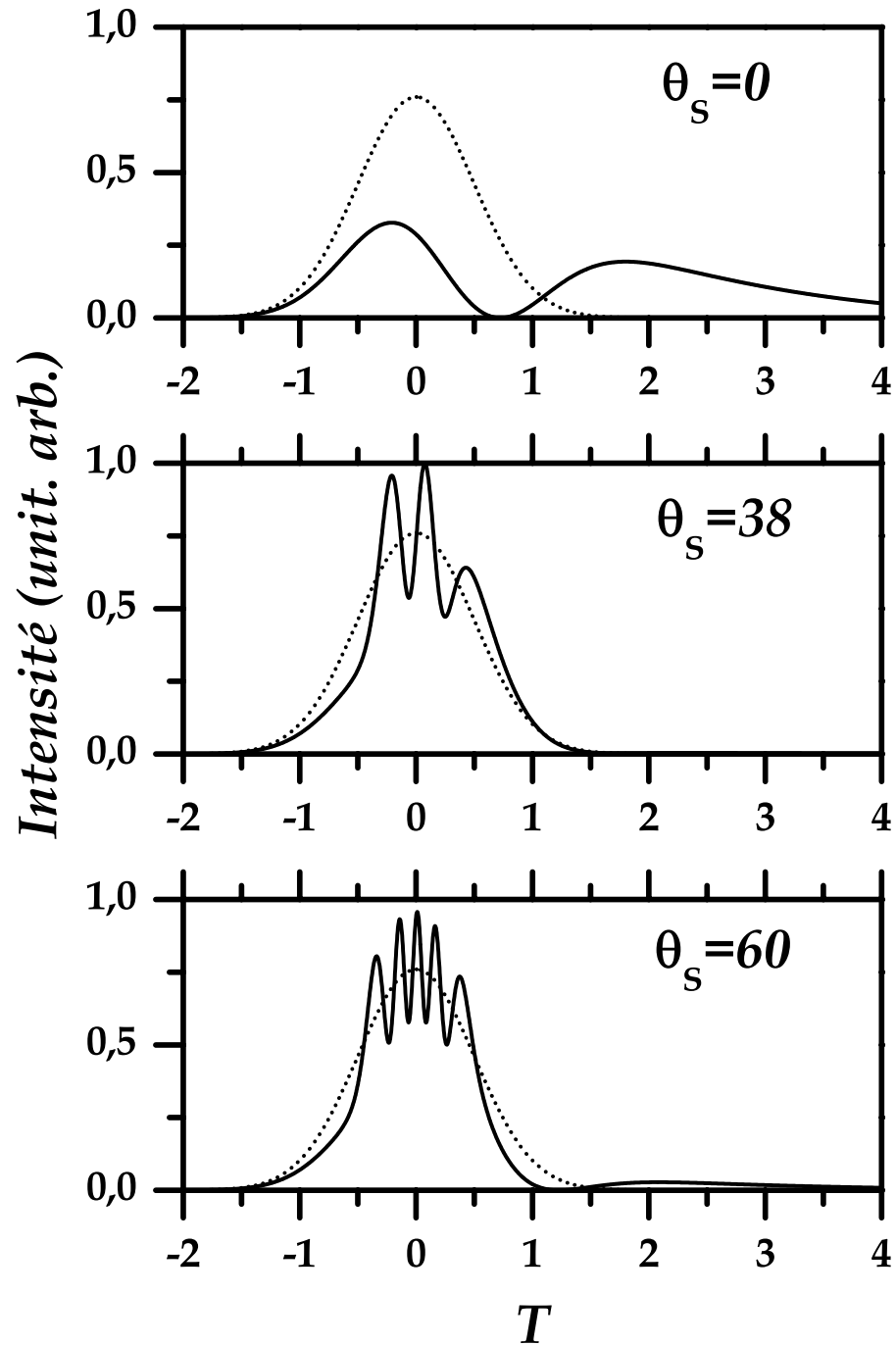


FIG. IV.6 – Profil temporel de l'impulsion transmise - Evolution avec  $\theta_S$  ( $e_{\text{disp}} = 1$ ,  $\theta_W = 0,15$  et  $\tau_{WS} = 2$ ,  $\Delta = 20$ ) : De haut en bas : profil d'intensité du champ transmis calculé respectivement pour  $\theta_S = 0, 38$  et  $60$  (trait plein). Dans chaque cas, le profil de l'impulsion incidente est représenté en pointillés. Quand  $\theta_S$  augmente, l'intensité transmise présente un nombre croissant d'oscillations. Ce nombre peut être évalué en calculant l'intégrale Stark  $\phi_S(T)$ .

Dans cette précédente équation, l'intégrale qui apparaît dans le second terme est une constante (c'est l'amplitude excitée à résonance au temps  $-T_0$ ). La modulation de l'intensité transmise ne montre de dépendance temporelle que vis-à-vis du champ incident  $f_W(0, T)$  et de  $\cos \phi_S(T)$  ( $\cos \theta(T)$  est un terme lentement variable). Ce dernier terme représente le cosinus de l'aire hachurée sur la figure IV.7. C'est ce terme qui est responsable des oscillations que l'on observe sur le profil temporel de l'impulsion transmise. Ces oscillations résultent du battement entre le champ incident de fréquence constante, et le champ rayonné à résonance par le dipôle de la transition faible dont la fréquence varie sous l'action du champ fort. En effet, la contribution résonante de ce dipôle est proportionnelle à  $\tilde{\alpha}_-^{(1)}(-T_0)e^{-i\phi_S(T)}$  (cf IV.13b). La fréquence du dipôle est donc modulée par la phase  $\phi_S(T)$ .

L'impulsion transmise présente un nombre total d'oscillations  $N_{\text{osc}} = \phi_S(+\infty)/2\pi$ . Par exemple, pour  $\theta_W = 60$  ce nombre est estimé numériquement à 4,5 qui est une valeur en bon accord avec le nombre d'oscillations observées sur la figure IV.6. Notons par ailleurs, que la profondeur de ces modulations est proportionnelle à  $e_{\text{disp}}$  : il est donc possible d'ajuster le contraste des oscillations en changeant la densité atomique  $n$  de la vapeur, dont dépend proportionnellement  $e_{\text{disp}}$ . Après l'action du champ de contrôle  $T_0 \leq T$ , l'état  $|-\rangle$  n'est plus déplacé ; le blocage de population cesse et la contribution résonante continue alors de croître mais la phase reste constante  $\phi_S(T_0) \simeq \phi_S(+\infty)$ . Comme discuté précédemment, cela conduit à une diminution importante du champ rayonné pour des instants  $T \geq T_0$ .

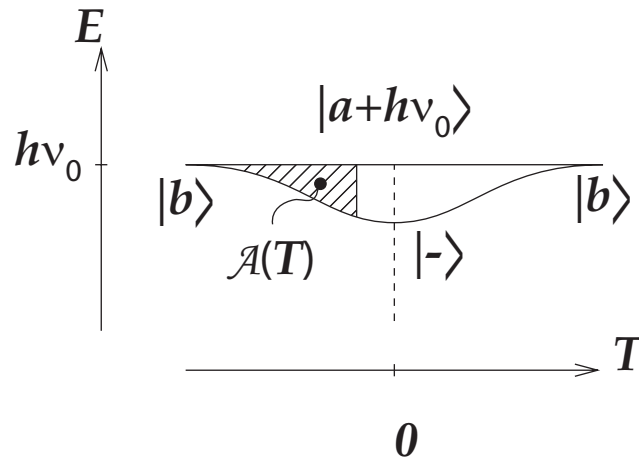


FIG. IV.7 – Interprétation géométrique de  $\phi_S(T)$  : L'aire hachurée  $\mathcal{A}(T)$  du triangle curviligne est égale à l'intégrale Stark  $\phi_S(T)$ . La phase  $\phi_S(T)$  donne le terme de battement entre le champ incident de fréquence constante et le champ rayonné par le dipôle de fréquence variable.

### IV.1.6 Etude spectrale

Les oscillations, qui apparaissent au voisinage du maximum sur le profil temporel de l'impulsion, ont une durée caractéristique plus courte que la durée limitée par transformée de Fourier de l'impulsion initiale (figure IV.8c en bas à gauche). Ceci implique un élargissement du spectre de l'impulsion transmise par rapport au spectre de l'impulsion incidente (figure IV.8d en bas à droite). Comme la modulation d'intensité résulte du battement entre le champ incident et le champ rayonné, l'élargissement provient du spectre du champ rayonné qui, du fait du déplacement lumineux, comporte de nouvelles composantes spectrales. En effet, le champ de contrôle est plus court temporellement que l'impulsion sonde. Avant l'action du champ fort ( $T < -T_0$ ), le champ faible transfère de la population dans l'état excité : un dipôle (cohérence atomique) apparaît et rayonne un champ à la fréquence de la transition atomique. Sous l'effet du déplacement lumineux induit par le champ fort, l'énergie de l'état  $|-\rangle$  est déplacée (dynamiquement) et la fréquence instantanée du dipôle balaye un domaine spectral qui s'étend de la résonance jusqu'au déplacement maximum  $\Omega_{\max}$ .

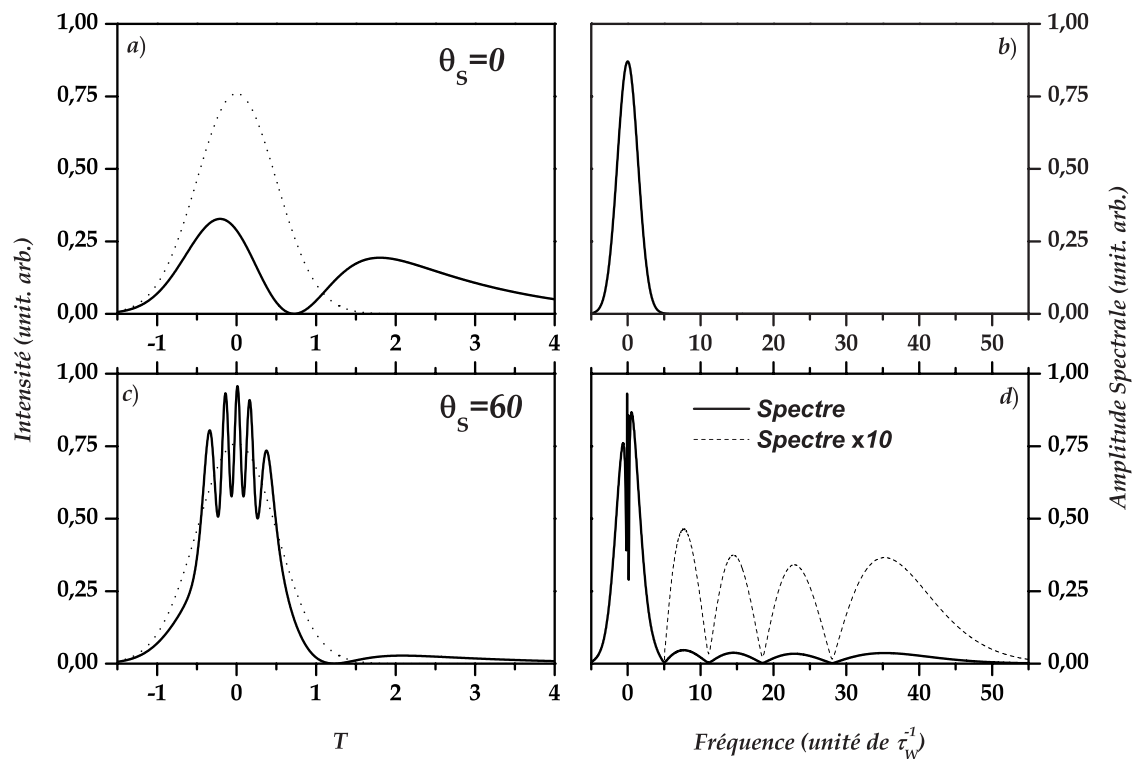


FIG. IV.8 – Déplacements lumineux transitoires - Effets sur les profils temporel et spectral de l'impulsion faible ( $\theta_W = 0, 15$  et  $\tau_{WS} = 2$ ,  $\Delta = 20$ ) : En a) et b) profils temporel et spectral de l'impulsion transmise pour  $\theta_S = 0$ . En c) et d) profils temporel et spectral de l'impulsion transmise pour  $\theta_S = 60$ . Les modulations temporelles (c) sont associées à des nouvelles composantes qui apparaissent dans la partie basse fréquence du spectre. Cette bande latérale induite par le déplacement lumineux s'étend sur une largeur du même ordre que le déplacement maximum  $\Omega_{\max}$ .

Le champ fort induit un déplacement de l'énergie de l'état  $|-\rangle$  qui reprend ensuite sa valeur initiale correspondant à l'état  $|b\rangle$  quand l'intensité du champ diminue. Une valeur quelconque de l'énergie du niveau déplacé  $\Omega_-$  est donc toujours présente à deux instants  $T_1$  et  $T_2$ , de part et d'autre (symétriquement) du maximum de l'impulsion (de profil temporel symétrique) comme le montre la figure IV.9. Ces deux contributions sont susceptibles d'interférer. La différence de phase

$$\Delta\phi = \phi(T_2) - \phi(T_1) = \phi_S(T_2) - \phi_S(T_1)$$

qui existe entre ces deux chemins donne le terme d'interférence [85]. Le spectre présente donc une bande latérale qui comporte des cannelures. Le nombre  $N_{\text{osc}}$  de ces oscillations est, comme dans le cas de l'interférence temporelle, égal à :

$$N_{\text{osc}} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega_-(T') dT' = \frac{\phi_S(+\infty)}{2\pi}$$

Cette interférence qui apparaît sous l'effet d'un déplacement lumineux correspond à une situation de franges de Ramsey temporelles [84, 86]. Contrairement aux franges de Ramsey habituelles, ce n'est pas la phase d'évolution libre du système qui donne le terme d'interférence, mais la phase du niveau déplacé.

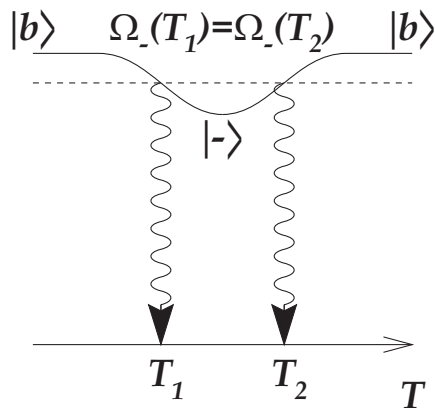


FIG. IV.9 – Déplacements lumineux transitoires - Franges de Ramsey : L'énergie du niveau déplacé apparaît deux fois à deux instants différents  $T_1$  et  $T_2$ . Le champ émis à la fréquence  $\Omega_-(T_1)$  est pondéré par le terme d'interférence donné par la différence de phase  $\Delta\phi = \phi(T_2) - \phi(T_1)$ .

### IV.1.7 Déplacement lumineux transitoires dans un système à 3 niveaux en $\Xi$ : Conclusion

Nous avons étudié l'effet dans un système à trois niveaux, d'un champ intense non résonant, sur la propagation d'une impulsion faible résonante. Durant l'action du champ fort, tout comme dans le cas de la propagation d'impulsions à dérive de fréquences, deux types d'interférences sont impliqués dans le processus.

Premièrement, les amplitudes de probabilité transférées, depuis l'état fondamental dans l'état excité, à résonance et hors résonance interfèrent. Il y a alors une modulation aussi bien dans la population de l'état excité que sur l'amplitude du champ rayonné.



Deuxièmement, les interférences entre le champ incident et le champ rayonné conduisent à une modulation importante de l'intensité transmise. Cette modulation exhibe le déplacement Stark, induit par le champ fort, sur le profil d'intensité du champ faible. Une fois encore, à l'instar de la propagation des impulsions à dérive de fréquence, seule la contribution résonante est impliquée dans l'interférence. Par contre l'analogie s'arrête ici, puisque dans le cas du système à trois niveaux, la phase de la contribution résonante est modulée par le déplacement Stark. En plus de la modulation d'intensité, le déplacement lumineux provoque le blocage du transfert de population qui, après l'action du champ fort, conduit à une réduction très efficace du champ rayonné à temps long dans la queue de dispersion. Un enrichissement du spectre transmis dû à la modulation de phase croisée résonante (XPM : *Cross (X) Phase Modulation*) accompagne ces effets. Ces résultats sont intéressants dans la perspective de disposer d'une méthode permettant de moduler directement dans le domaine temporel des impulsions ultracourtes [87].

## IV.2 Système à 2 niveaux sous excitation "bichromatique"

### IV.2.1 Système étudié

Dans la partie précédente, nous nous sommes intéressés aux modifications de réponse du milieu induite de manière transitoire par un champ fort. Le champ de contrôle était appliqué sur une transition différente de celle du champ faible. La réponse du système n'était alors affectée que par les déplacements lumineux provoqués par le champ fort uniquement sur le niveau excité de la transition sondée. Nous allons maintenant considérer une situation où le champ de contrôle non résonant de durée  $\tau_S$ , interagit sur la même transition que le champ faible résonant de durée  $\tau_W$ . On suppose une configuration telle que celle décrite par la figure IV.10.

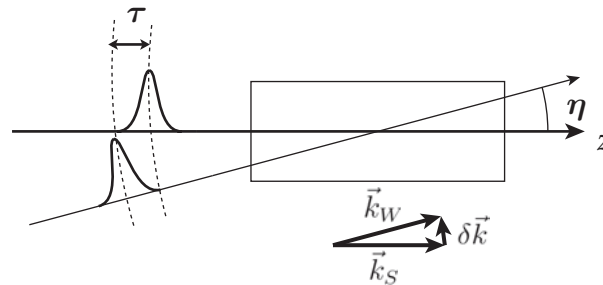


FIG. IV.10 – Excitation "bichromatique" - Géométrie de l'interaction : L'impulsion intense se propage selon la direction  $\vec{k}_S$  prise comme axe  $z$ . Le champ sonde se propage selon la direction  $\vec{k}_W = \vec{k}_S + \delta\vec{k}$ , qui fait un angle  $\eta$  avec le champ fort. Le délai  $\tau$  entre les deux impulsions est variable.

Par rapport au cas précédent, en plus des déplacements lumineux (TLS) dont l'analyse est ici plus complexe, nous verrons également le rôle des transitions non adiabatiques

(NAE). Suivant les différentes géométries de l'interaction (délai  $\tau$  et angle  $\eta$ ), nous pourrions séparer les différents phénomènes comme résumé dans le tableau IV.1. Enfin, l'action du champ fort induit aussi une modulation du moment dipolaire à la fréquence de battement entre les champs  $A_W$  et  $A_S$ . Cet effet absent dans le cas du système à trois niveaux rend l'interprétation des simulations numériques plus complexe. Nous présenterons l'analyse et les résultats théoriques dans la section suivante. Des résultats expérimentaux partiels seront présentés dans la section IV.2.3 pour le cas  $\eta = 0$  et  $\tau = 0$ .

	Délai $\tau \gg \tau_S$	Délai nul $\tau = 0$
Non colinéaire $\eta \neq 0$	-	TLS
Colinéaire $\eta = 0$	NAE	NAE + TLS

TAB. IV.1 – Influence de la géométrie (NAE : Non Adiabatic Effects, TLS : Transient Light Shift) : *En géométrie colinéaire, l'impulsion sonde pour  $\tau \gg \tau_S$  n'est sensible uniquement qu'à la population transférée dans l'état excité par les transitions non adiabatiques induites par le champ fort. En configuration non colinéaire, l'impulsion sonde n'est sensible aux déplacements lumineux induits par l'impulsion de contrôle que lorsque les deux impulsions se recouvrent temporellement.*

## IV.2.2 Article

# Spectral and temporal modifications of a weak resonant ultrashort pulse propagating in a two-level system driven by a strong non-resonant field

J. C. Delagnes, F. Ather Hashmi and M. A. Bouchene

*Laboratoire de Collisions Agrégats Réactivité, C.N.R.S. UMR 5589, IRSAMC, Université Paul Sabatier, 118 Route de Narbonne, 31062 TOULOUSE CEDEX 4, FRANCE*

## Abstract

An ultrashort strong non-resonant pulse induces transient phenomena in an optically thick medium consisting of an assembly of two-level atoms (non-adiabatic transitions, transient light-shifts, ...). A weak resonant pulse probes these changes and we study theoretically and numerically the temporal and spectral modifications that are induced. Moreover, we identify the conditions where the non-adiabatic effects due to the driving field can be revealed. We also show that the light-shifts can induce a temporal modulation in the pulse envelope of the weak field while reducing efficiently the distortion of the pulse at long time scale.

## I -Introduction

The interaction of light with the two-level system provides a very convenient way of understanding light matter interactions as it highlights many aspects of these interactions without being overly complex. In this regard a lot of theoretical and experimental work on the dynamics of the driven two-level system has been accumulated. A whole range of new phenomena has been predicted and later experimentally verified. Rabi oscillations [1], adiabatic following [2], and Mollow triplet of fluorescence [3] are some to name in the case when a strong field interacts with a two-level system. A situation that is often studied is the case where a strong non-resonant driving field brings the system to a stationary state that is probed by a weak field. A large literature is devoted to the spectral modifications that are induced [4]. Little work deal with transient effects [5], while the situation where the exciting pulses are ultrashort (time duration smaller than relaxation and Doppler dephasing times) has largely been ignored. The action of a strong non-resonant ultrashort pulse leads to many striking phenomena like non-adiabatic transitions, transient light-shifts and the induction of a time dependent dipole momentum. For instance, it was shown that the population transfer to the excited state can be optimized by choosing the shape of the pulse that improves the non-adiabatic transitions [6]. It was also shown that transient light-shift in a three level ladder system driven by a strong non-resonant pulse on upper transition induce modulations on the temporal shape of a weak pulse that is resonant on the lower transition [7].

In this paper, we study the interaction of the two-level system with strong non-resonant ultrashort, driving pulse and a weak resonant propagating pulse. The medium is optically thick and we are interested in the modifications in spectral and temporal profiles

of the transmitted pulses. The interplay of the phenomena cited above are discussed and analyzed. We distinguish between two situations. First, the two pulses are co-propagating in space with a time delay and we focus on the spectral behavior of the pulses. Non-adiabatic effects are shown to play an important role in the modification of the spectrum at the exit of the medium. The second situation corresponds to cross-propagating scheme (with a small angle between the two pulses). In this situation, the weak pulse is insensitive to non-adiabatic effects and is modified only by the light-shifts induced by the strong pulse. The modulation obtained is interpreted as an interference process between the incident field and the radiated field whose frequency sweeps in time because of the light-shift.

The paper is organized as follows. In section II, we describe in detail the phenomena that appear when a strong non-resonant ultrashort pulse interacts with a two-level system in the optically dense medium regime. In section III, we introduce a weak resonant pulse which probes this interaction. In III-1, the two pulses are co-propagating and we study the changes on the transmitted spectrum (and the population at the entrance). In III-2, the two pulses are cross-propagating and we focus on the physics of the temporal shaping of the weak pulse. Finally in Section IV, we summarize the main results obtained and give some perspective for the future work.

## II - Interaction of a two-level system with a strong non-resonant ultrashort pulse

We consider a two-level system with states  $|a\rangle$  and  $|b\rangle$  and with energies 0 and  $\hbar\omega_0$ . The system is driven by a strong ultrashort pulse whose expression is :

$$E_d(z, t) = \frac{1}{2}\epsilon_{0d}f_d(z, t)e^{-i(\omega_d t - k_d z)} + c.c. \quad (\text{II.1})$$

$\epsilon_{0d}$  is the field amplitude and  $f_d$  is the envelope of the field. We designate by *c.c* the complex conjugate. We assume throughout this paper that the envelope of the field is real at the entrance and is normalized so that

$$\int_{-\infty}^{+\infty} f_d(z=0, t) \frac{dt}{\tau_d} = 1$$

where  $\tau_d$  is the temporal width of the pulse at the entrance and is also our unit of time.  $\tau_d^{-1}$  is the spectral bandwidth of the pulse. Exact expression for  $f_d$  will be given later. The central frequency of the field  $\omega_d$  is detuned from the resonance  $\omega_0$ . We introduce dimensionless time and space variables  $Z$  and  $T$  as  $T = (t - z/c)/\tau_d$  and  $Z = z/L$ . Here,  $L$  is the length of the sample through which the pulse propagates.

### II.1 - Bare state description

The wave function of the system can be written as :

$$|\psi\rangle(Z, T) = a(Z, T) |a\rangle + b(Z, T)e^{-i\omega_d T} |b\rangle \quad (\text{II.2})$$

Using the Maxwell-Schrödinger equation and within the rotating wave approximation (RWA), we obtain the following equations for the evolution of atomic quantities ( $\partial_T \equiv$

$\partial/\partial T$ )

$$i \begin{pmatrix} \partial_T a \\ \partial_T b \end{pmatrix} (Z, T) = \begin{pmatrix} 0 & -\theta_d f_d^*/2 \\ -\theta_d f_d/2 & \Delta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} (Z, T) \quad (\text{II.3})$$

and the electric field evolves as (neglecting Doppler effect) [10]

$$\frac{\partial}{\partial Z} f_d = i \frac{e_{\text{disp}}}{\theta_d} a^* b \quad (\text{II.4})$$

Here  $\Delta = (\omega_0 - \omega_d)\tau_d$  is the detuning and  $\theta_d = \mu\epsilon_0 d\tau_d/\hbar$  is the pulse area that characterizes the strength of the pulse. The dimensionless coefficient  $e_{\text{disp}} = \frac{N\mu^2\omega_d}{2\hbar\epsilon_0 c} L\tau_d$  characterizes the importance of propagation effects on the  $|a\rangle - |b\rangle$  transition and depends on the atomic density  $N$ . Generally, the solution of equation II.3 can not be derived analytically for an arbitrary shaped pulse in the non-resonant situation ( $\Delta \neq 0$ ) whereas the result is straightforward for a resonant pulse ( $\Delta = 0$ ) with real envelope. In this case, at the entrance of the medium, since all the atoms are initially in the ground level, we obtain

$$a(0, T) = \cos\left(\frac{\theta_d}{2} \int_{-\infty}^T f_d(T) dT\right)$$

and

$$b(0, T) = i \sin\left(\frac{\theta_d}{2} \int_{-\infty}^T f_d(T) dT\right)$$

Well known Rabi oscillations arise and the asymptotic value of the amplitudes depends on the pulse area  $\theta_d$ . Note that the pulse area is proportional to the Fourier transform of the field at the central laser frequency i.e.  $\int_{-\infty}^{+\infty} f_d(T) dT$ .

The modification of the pulse through propagation is due to the radiation of the dipole  $a^*b$  as shown by equation II.4. For a pulse far from resonance, the dipole amplitude is strongly reduced and the distortion of the pulse is small (unless atomic density is very high). For a resonant pulse in the weak field regime,  $\theta_d \ll 1$ , and  $|a^*b| \sim \theta_d/2$  (for  $T \rightarrow +\infty$ ) and the distortion of the field becomes important when  $e_{\text{disp}} \geq 1$ . Moreover, this quantity can be related to the better known optical depth parameter  $\alpha_0 L$  ( $\alpha_0$  is the absorption line coefficient at resonance) by  $e_{\text{disp}} = \alpha_0 L \Delta_D \tau_d$  where  $\Delta_D$  is the Doppler width. In the weak field regime,  $\alpha_0 L \Delta_D$  represents the spectral domain around the resonance over which the dispersion affects the spectral phase of the incident pulse [8]. Thus,  $e_{\text{disp}} = \alpha_0 L \Delta_D \tau_d$  can be interpreted as the ratio between this spectral range and the spectral bandwidth of the pulse. Therefore  $e_{\text{disp}} \geq 1$  means that dispersion alters the phase of all the spectral components of the incident pulse and so propagation effects can not be neglected. For a resonant pulse in the strong field regime ( $\theta_d \geq 1$ ), the dipole amplitude can not exceed its maximum value  $1/2$  and the propagation effects are small as far as  $\theta_d \gg e_{\text{disp}}$ . Note that, the absorption is always negligible for ultrashort pulses since their spectral bandwidth is much larger than the Doppler width.

## II.2 - Adiabatic description

Another representation for the system is possible in which the effect of the field in the non-resonant case is more clearly exhibited. This can be achieved by transforming the

system of equation into the eigenbase of fully perturbed Hamiltonian  $H$  (within the RWA). We define the new basis *at the entrance of the medium* by the following transformation

$$\begin{aligned} |-\rangle(T) &= \cos \phi(T) |a\rangle + \sin \phi(T) e^{-i\omega_d T} |b\rangle \\ |+\rangle(T) &= -\sin \phi(T) |a\rangle + \cos \phi(T) e^{-i\omega_d T} |b\rangle \end{aligned} \quad (\text{II.5})$$

with  $\theta$  given by

$$\tan(2\phi) = \frac{\theta_d}{\Delta} f_d(0, T) \quad (\text{II.6})$$

For the new basis we write the wave function as

$$|\psi\rangle(Z, T) = \alpha_-(Z, T) |-\rangle(T) + \alpha_+(Z, T) |+\rangle(T) \quad (\text{II.7})$$

The adiabatic description, with the adiabatic states defined at the entrance allows, us to concentrate all the  $Z$ -dependence of the field and the atomic quantities in amplitudes  $\alpha_+$  and  $\alpha_-$ . From equations II.2, II.5, II.7, we get the following relations between the amplitudes in the two basis set :

$$a = -\alpha_+ \sin \phi + \alpha_- \cos \phi \quad (\text{II.8a})$$

$$b = \alpha_+ \cos \phi + \alpha_- \sin \phi \quad (\text{II.8b})$$

and obtain the following equation for the evolution of amplitudes

$$i\partial_T \begin{pmatrix} \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} = M_{adiab} \begin{pmatrix} \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} \quad (\text{II.9a})$$

with

$$M_{adiab} = \begin{pmatrix} \Delta \sin^2 \phi - \frac{\sin 2\phi}{4} \theta_d (f_d + f_d^*) & i\partial_T \phi + \frac{\theta_d}{2} (f_d \sin^2 \phi - f_d^* \cos^2 \phi) + \frac{\Delta}{2} \sin 2\phi \\ c.c. & \Delta \cos^2 \phi + \frac{\sin 2\phi}{4} \theta_d (f_d + f_d^*) \end{pmatrix} \quad (\text{II.9b})$$

### II.2.a - Behaviour of the system at the entrance of the medium

At the entrance of the sample we have  $f_d(0, T) = f_d^*(0, T)$  and so equation II.9a simplifies to :

$$i\partial_T \begin{pmatrix} \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (-\Omega + \Delta)/2 & i\partial_T \phi \\ -i\partial_T \phi & (\Omega + \Delta)/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} \quad (\text{II.10})$$

Here,  $\Omega$  is the generalized Rabi frequency (in units of  $\tau_S$ ) defined as  $\Omega = \sqrt{\theta_d^2 f_S^2 + \Delta^2}$ . The diagonal terms  $(\Delta \pm \Omega)/2$  represent the eigenenergies of the total Hamiltonian and  $\partial_T \phi$  is the non-adiabatic coupling term which depends strongly on the shape of the pulse.  $\Omega$  gives the instantaneous separation of the energy levels becoming  $\Delta$  as  $T$  approaches  $\pm\infty$ .

In the resonant case  $\Delta = 0$ ,  $\Omega = \theta_d f_d$ ,  $\theta = \pi/4$  and  $\partial_T = 0$ . Initially, the population is distributed between the two adiabatic states *i.e.*  $\alpha_{\pm}(T \rightarrow -\infty) = \mp 1/\sqrt{2}$  and at time  $T$  the amplitudes are given by the expression

$$\alpha_{\pm}(T \rightarrow -\infty) = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} e^{\pm i \frac{\theta_d}{2} \int_{-\infty}^T f_S dT'}$$

The population in the states  $|a\rangle$  and  $|b\rangle$  which are linear superposition of the adiabatic states (relation II.7) exhibits Rabi oscillations as discussed in the previous paragraph.

In the non-resonant case and in the absence of the off-diagonal term, the evolution is adiabatic. The system starts from bare states at  $T \rightarrow -\infty$ , i.e.  $|-\rangle(T \rightarrow -\infty) = \exp(-i\omega_d\tau_d T)|a\rangle$ , and  $|+\rangle(T \rightarrow -\infty) = \exp(-i\omega_d\tau_d T)|b\rangle$ . The strong field introduces new states by light-shifts, and as  $T \rightarrow +\infty$ , the system moves back to the original configuration. The important feature of this evolution is that there is no transfer of population to the excited state  $|+\rangle$ . So if initially there was no population in the excited state, there will be no population in that level at the end of the pulse. The action of the strong field is manifested with the time dependent light-shift of the adiabatic levels. Note that the  $|b\rangle$  state is always transiently populated during the action of the pulse. However, if the evolution is adiabatic, the population in  $|b\rangle$  state vanishes at the end of the pulse.

In the presence of non-diagonal coupling term, there can be non-adiabatic transitions resulting in some population transfer to the excited level. The non-adiabaticity of the system can be evaluated by measuring the inverse Massey parameter defined as the ratio between the coupling term  $\partial_T\phi$  and the dynamical light-shift term  $\Omega$  :

$$M^{-1} = \partial_T\phi/\Omega \quad (\text{II.11})$$

For  $M^{-1} \ll 1$ , the evolution can be considered as adiabatic and the system experiences only light-shifts. Otherwise, the interaction leads also to population transfer that depends strongly on the shape of the pulse through  $\partial_T\phi$  [6]. To illustrate this matter, we consider three pulses with the same pulse area  $\theta_d = 63$  but with different pulse shapes. These are Gaussian, Hyperbolic Secant, and Hyperbolic Secant Squared. The expressions for these are as follows :

$$f_d^{\text{Gauss}}(T) = \frac{1}{\sqrt{\pi}}e^{-T^2} \quad (\text{II.12})$$

$$f_d^{\text{sech}}(T) = \frac{1}{2}\text{sech}\left(\frac{\pi T}{2}\right) \quad (\text{II.13})$$

$$f_d^{\text{sech}^2}(T) = \frac{\pi}{4}\text{sech}^2\left(\frac{\pi T}{2}\right) \quad (\text{II.14})$$

For the resonant case with field strength parameter  $\theta_d = 63$ , the population  $n_b$  transferred to the excited state  $|b\rangle$  is the same for the three pulse shapes and can be calculated analytically. It is given by  $\sin^2(\theta_d/2) \simeq 0,007$ . In the non-resonant case with  $\Delta = 7,5$  , we plot the inverse Massey parameter in Fig. 1-a. Even if this quantity remains small, its effect can not be neglected. In Fig. 1-b, we see that approximately the population in the excited state  $|b\rangle$  follows adiabatically the laser field, the non adiabatic effects are visible through the Rabi oscillations that take place only if the state  $|+\rangle$  has been populated. When the pulse ends, numerical simulations show that the asymptotic values of the population in the excited state are  $1,2 \times 10^{-3}$  ,  $8,6 \times 10^{-9}$  and  $2,4 \times 10^{-4}$  for the Gaussian, Hyperbolic Secant, and Hyperbolic Secant Squared respectively. The Hyperbolic Secant is the less efficient pulse to transfer population non-resonantly to the excited state. This is a well known property of this kind of pulse and is related to the absence of power broadening [9,10]. Contrary to the resonant case, now, the asymptotic values of excited state

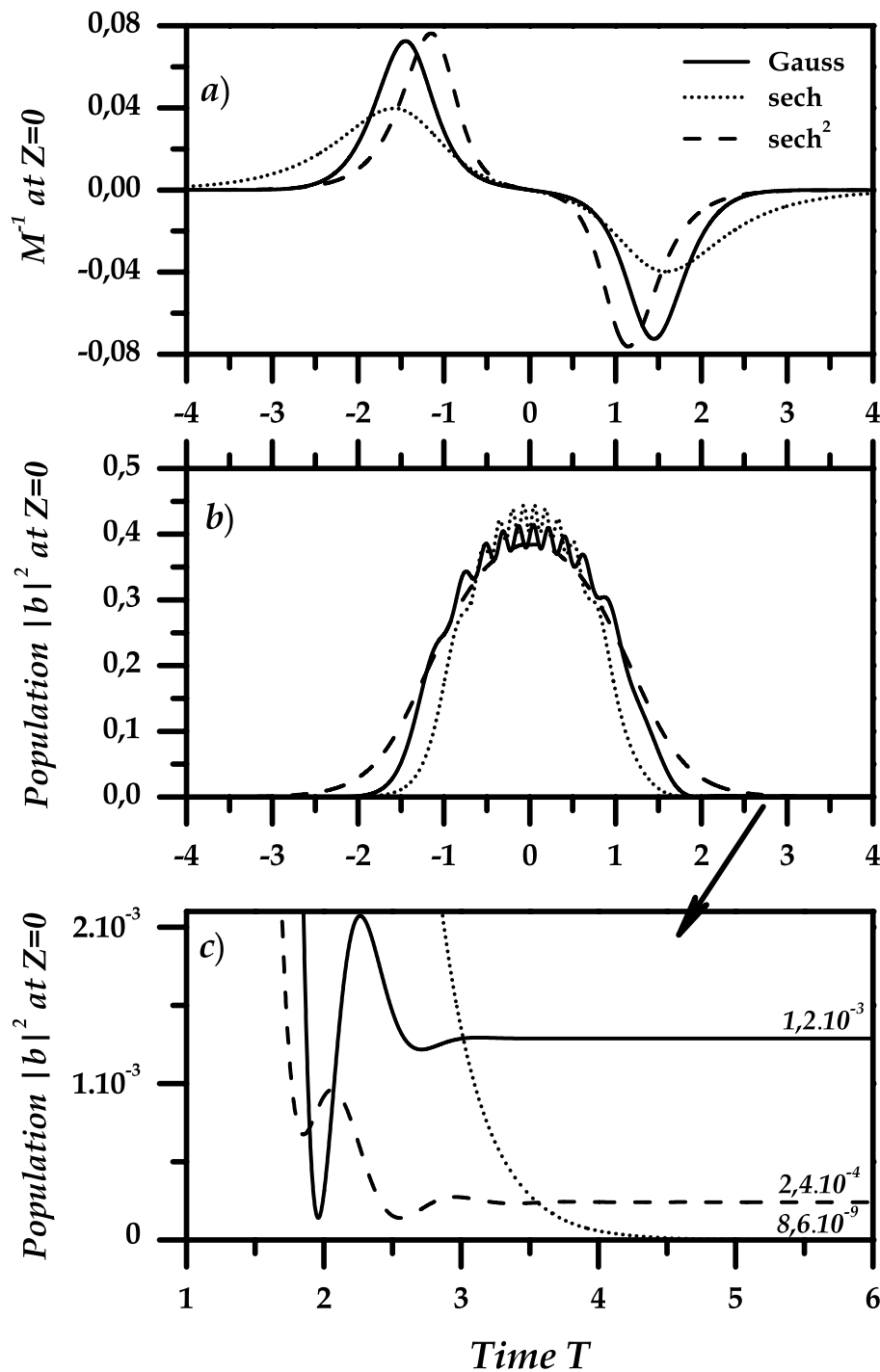


FIG. 1 : (a) Time dependence of the inverse Massey parameter for various envelopes. (b) corresponding time dependence of the  $|b\rangle$  state population at the entrance of the medium. Here,  $\theta_d = 63$  and  $\Delta = 7,5$ .



population cannot be explained from the spectral components at resonance in the wing of the pulse spectrum. For instance, in the case of the gaussian pulse and for  $\Delta = 7,5$ , the ratio between the spectral components at resonance and at central laser frequency is  $e^{-28,125}$ . This would give an effective pulse area of  $4,9 \times 10^{-5}$  and an asymptotic value of  $6 \times 10^{-10}$  for the population in the state  $|b\rangle$ . This is six orders of magnitude less than the actual population transferred, and so the components at resonance in the spectrum of the pulse can not account for the observed population transfer. This example shows clearly, the qualitative change of physics when we switch from the resonant case, where the behaviour of the system depends on the spectral components at resonance, to the non-resonant regime, where the validity of this interpretation breaks down.

### II.2.b - Behaviour of the system during propagation, modification of the pulse spectrum

During propagation, the electric field is distorted in both temporal and spectral domains. The phase of the electric field evolves starting from zero and the envelope is no longer real. Another feature that results from equations II.9a, II.9b is that the non-adiabatic coupling term is modified and the transitions between the adiabatic states (defined at the entrance of the medium) change accordingly. However, if the interaction is purely adiabatic at the entrance ( $\partial_T \phi \rightarrow 0$ , that occurs when  $\phi \rightarrow 0$  or  $\pi/4$ ), the non-adiabatic coupling term introduced by the propagation also vanishes, and the propagation process can not improve the population transfer.

When  $\partial_T \phi \neq 0$ , the propagation results in the generation of new frequency components. Fig. 2 shows the modification of the spectrum for the gaussian pulse with  $\theta_d = 63$  and  $\Delta = 7,5$  when it propagates in a medium with  $e_{\text{disp}} = 0,75$ . For this value as pointed in the last paragraph of §II-1, the strong pulse is slightly modified by propagation effects. The curve in dotted line represents the spectrum at the entrance with the position of the atomic resonance shown (far from the pulse spectrum). The curve in solid line represents the spectrum at the exit in the logarithmic scale. New frequency components appear in the form of an oscillatory structure that can be understood by looking at the dipole representation in the dressed state (Fig. 3). The dipole is the atomic quantity responsible for the radiated field in accordance with equation II.4. In addition to the central laser frequency  $\omega_d$ , the dipole radiates at frequencies  $\omega_d + \Omega$  and  $\omega_d - \Omega$  resulting in the appearance of high and low frequency components respectively. This structure is analogous to the Mollow triplet, studied first in the monochromatic case [3]. When dealing with pulses, the position of the peaks becomes time dependent through the generalized Rabi frequency  $\Omega(T)$ . The two side peaks sweep from the initial values  $\omega_d \pm \Delta$  to the maxima  $\omega_d \pm \sqrt{\theta_d^2/\pi + \Delta^2}$  at  $T = 0$ , and then return back to their initial positions when the field vanishes. Each frequency in these bands (high and low) appears twice, so the two interfere and give the pattern shown in the figure. The extrema are located around  $\omega = \omega_d \pm 36,3$  in accordance with the numerical simulations of Fig. 2.

Two important remarks have to be noted at this level. First, the new frequencies created can be generated only if  $\partial_T \phi \neq 0$ . Otherwise, since initially all the atoms are in the ground state,  $\alpha_+(Z, T)$  remains 0 throughout the pulse duration, and the dipole radiates only around the central laser frequency  $\omega_d$ . Secondly, the low and high frequency compo-

nents arise during the transient time only, and when the pulse ends, the dipole continues to radiate at resonance frequency provided there has been some population transfer due to non-adiabatic effects. Thus, the population left asymptotically in the excited state modifies the spectrum of the radiated field only around a narrow window around the atomic resonance frequency.

The relative weight of the generated frequencies can be understood as follows. Using relations in II.8, the dipole which generates new frequencies is given in terms of dressed amplitudes as follows :

$$a^*b = \frac{\sin(2\phi)}{2}(|\alpha_-|^2 - |\alpha_+|^2) + \alpha_-^* \alpha_+ \cos^2 \phi - \alpha_- \alpha_+^* \sin^2 \phi \quad (\text{II.15})$$

The high frequency contribution to the dipole is given by the  $\alpha_-^* \alpha_+ \cos^2 \phi$  term (transition  $1 \rightarrow 4$ ) and the low frequency components by  $\alpha_- \alpha_+^* \sin^2 \phi$  (transition  $2 \rightarrow 3$ ). The remaining term  $\sin(2\phi)(|\alpha_-|^2 - |\alpha_+|^2)/2$  (transitions  $1 \rightarrow 3$  and  $2 \rightarrow 4$ ) gives the contribution at  $\omega_S$ . As for positive detuning  $\cos^2 \phi$  given by  $(\Omega + \Delta)/2$  is greater than  $\sin^2 \phi((\Omega - \Delta)/2)$ , so the high frequency components are greater in magnitude than lower ones in accordance with Fig. 2.

In the following an ultrashort weak pulse probes the changes induced by the strong field on the system. We will show that all the effects described here including the small non-adiabatic effects which only slightly modify the strong field, can disturb significantly the properties of a resonant propagating weak field.

### III - Propagation of a resonant weak pulse in an atomic system driven by a strong non-resonant ultrashort pulse

In this section, we again consider that the atomic system is driven by the strong non-resonant pulse such that

$$\Delta, M \geq 1 \quad (\text{III.16})$$

These conditions ensure that small non-adiabatic effects will occur in the system. An ultrashort resonant weak pulse propagates in the system. The goal of our study is double. First, we will identify the conditions where these non-adiabatic effects can be revealed by the probing process. Secondly, we will study to what extent the modifications induced by the strong driving field in the system influence the properties of the weak pulse in both spectral and temporal domains. We assume that at the entrance of the medium, the propagating resonant pulse is coherent with the non-resonant driving pulse but may be time delayed and may have a different direction of propagation. Experimentally it is possible to have two coherent pulses with different central frequencies in several manners *e.g.* using Raman [11] or pulse shaping techniques [12]. We introduce the weak field in the system as :

$$E_p(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \epsilon_{0p} f_p(z, t) e^{-i(\omega_0 t - \vec{k}_p \vec{r})} + c.c. \quad (\text{III.17})$$

$\epsilon_{0p}$  is the field amplitude (real) and  $f_p$  is the envelope of the field defined at the entrance of the medium. For sake of simplicity we choose the same shape for both pulses but with different pulse duration  $\tau_d$  and  $\tau_p$ . Then we can write :

$$f_p(z = 0, t) = f_d(z = 0, (t - \tau)/\tau_{pd}) e^{i\beta} \quad (\text{III.18})$$

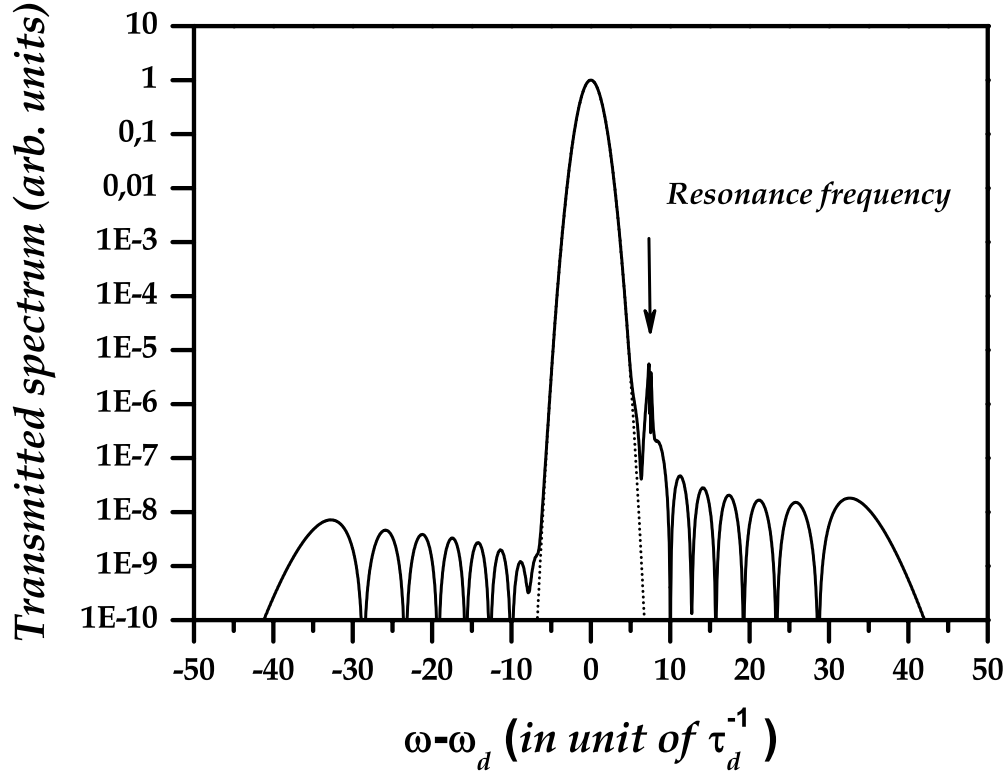


FIG. 2 : Transmitted intensity spectrum of a strong non-resonant pulse propagating in an optically dense assembly of two-level atoms. The parameters are  $\theta_d = 63$ ,  $\Delta = 7,5$  and  $e_{\text{disp}} = 0,75$ .

where  $\tau$  is the delay between the pulses,  $\tau_{pd} = \tau_p/\tau_d$  is the ratio between the duration of the weak propagating and the strong driving fields and  $\beta = \omega_0\tau$ . The phase factor ensures that coherent preparation of the pulse sequence is achieved.

The Schrödinger equation in the adiabatic state representation now becomes :

$$i\partial_T \begin{pmatrix} \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} = (M_{\text{adiab}} + V) \begin{pmatrix} \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} \quad (\text{III.19})$$

with  $V$  the perturbation matrix due to the weak field  $V = V^{(+)}e^{i\delta\vec{k}\vec{r}} + V^{(-)}e^{-i\delta\vec{k}\vec{r}}$ ,  $V^{(+)}$  given by :

$$V^{(+)} = \frac{\theta_p}{2\tau_{pd}} f_p e^{-i\Delta T} \begin{pmatrix} -\frac{1}{2} \sin 2\phi & \sin^2 \phi \\ -\cos^2 \phi & \frac{1}{2} \sin 2\phi \end{pmatrix} \quad (\text{III.20})$$

and  $V^{(-)} = (V^{(+)})^\dagger$ . Here,  $\delta\vec{k} = \vec{k}_p - k\vec{e}_z$  and  $\theta_p = \mu\epsilon_{0p}\tau_p/\hbar$  represents the pulse area of the probe pulse. In this representation, the perturbation matrix has both diagonal and non-diagonal terms that depend on both the driving and the propagating fields. In the presence of the strong driving field the dipole moment experienced by the weak propagating pulse is modified. The diagonal terms induce self phase modulation and the non-diagonal terms modify the behaviour of the non-adiabatic transitions. The self phase modulation

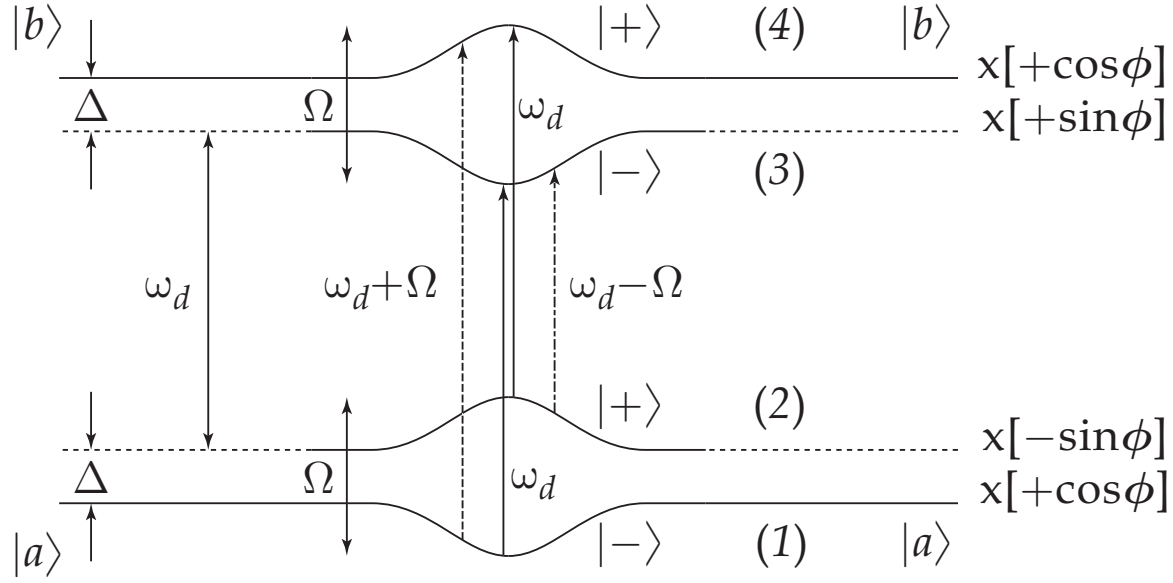


FIG. 3 : Dressed-state representation : each stationary state can be decomposed as a linear superposition of the two adiabatic states with time dependent energies. Three resonance frequencies appears at  $\omega_d$  (solid arrows),  $\omega_d + \Omega$  (dashed arrow),  $\omega_d - \Omega$  (dotted arrow)

contributions are small when compared to the light-shift as long as the propagating field is weak ( $\theta_p \ll 1$ ). The non diagonal terms depend on the relative phase shift  $\beta = \omega_0\tau$  through the envelope  $f_p$ . This allows a coherent control of the non-adiabatic transition, by varying the time delay between the pulses. As the interaction depends on too many parameters, we restrict now our study to special cases where the physics of the interaction can be highlighted. We distinguish between the two cases, one in which the two pulses are collinear and the other in which they have a small angle between them. We consider both, the behaviour of the population at the entrance of the medium which characterizes the response of a single atom, and that of the transmitted field which characterizes the collective response. Moreover, in the co-propagating pulse, as the two pulses can not be separated, we study the spectral modification of the pulse sequence. In the non-collinear case, the pulses can be separated spatially and so we study the temporal modifications of the weak propagating pulse.

### III.1 - Case of co-propagating pulses

In this case,  $\delta\vec{k} = 0$ . Let us consider the situation at the entrance of the medium where  $f_d = f_d^*$ . From equations II.9b, III.18-III.20, we obtain the following equations for

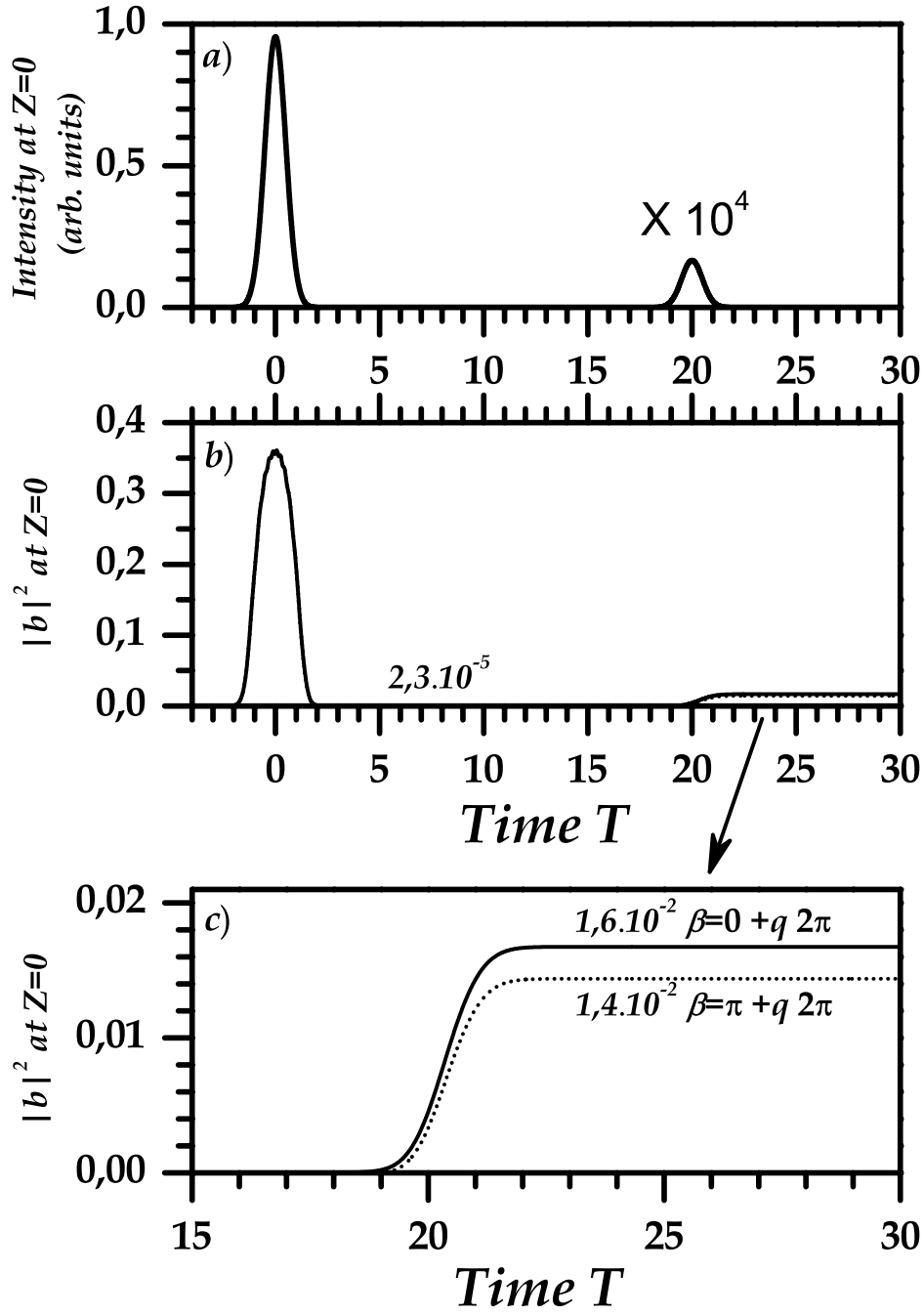


FIG. 4 : (a) Two-pulse sequence constituted by the strong non-resonant driving field and the weak resonant one (co-propagating case). (b) Evolution of the population in the  $|b\rangle$  state for two values of the phase-shift  $\beta = 0[2\pi]$  and  $\beta = \pi[2\pi]$ . Here,  $\theta_d = 60$ ,  $\theta_p = 0,25$  and  $\Delta = 10$ ,  $\tau_{pd} = 1$ ,  $\tau/\tau_d = 20$ , and  $e_{\text{disp}} = 0,75$ .

the evolution of the amplitudes :

$$i\partial_T \begin{pmatrix} \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} \simeq \begin{pmatrix} \frac{\Delta-\Omega}{2} & i\partial_T\phi - f_p(\phi=0)\frac{\theta_p}{2\tau_p} \left[ \frac{\Delta}{\Omega} \cos(\Delta T - \beta) + i \sin(\Delta T - \beta) \right] \\ c.c. & \frac{\Delta+\Omega}{2} \end{pmatrix}_{(z=0)} \begin{pmatrix} \alpha_- \\ \alpha_+ \end{pmatrix} \quad (\text{III.21})$$

The coupling between the adiabatic states has been modified by the presence of the weak field. The small population transfer to the excited state due to the strong driving field alone through the  $i\partial_T\phi$  term can now be revealed by the interference process. Moreover if the two pulses are time separated, using equation III.21 and the fact that  $\Omega(T \gg 1) = \Delta$ , the population  $n_b$  in the excited state  $|b\rangle$  at the end of the weak pulse can be approximated up to the first order by the expression :

$$n_b \simeq \left| b^{(0)} + i\frac{\theta_p}{2} e^{i\beta} \right|^2 \quad (\text{III.22})$$

Here,  $b^{(0)}$  is the amplitude in this state created by the strong driving field alone (zero order) and contains the signature of the non-adiabatic transitions. The variation of the population as a function of the phase shift  $\beta$  exhibits oscillations with a modulation equal to  $2\theta_p|b^{(0)}|$ . Knowing the weak field strength, the measure of the modulation gives access to the small population left by the strong driving field. This method is equivalent to the heterodyne technique used to extract a small DC signal by mixing with an AC signal. The method gives an increase in sensitivity of the order of  $2\theta_p/|b^{(0)}|$  in comparison with the direct measurement of the population left by the driving field. The best situation is obtained at the limit of the weak field regime  $\theta_p \simeq 1$ . We represent in Fig. 4 the case of Gaussian pulses with  $\theta_d = 60$ ,  $\theta_p = 0,25$ ,  $\Delta = 10$ ,  $\tau_{pd} = 1$  and the delay between the pulses is  $\tau/\tau_d=20$ . The driving field alone leaves a population which is small ( $2,3 \times 10^{-5}$ ). The action of the weak field reveals the presence of this population with a signal that varies by a factor of  $2 \times 10^{-3}$  when the phase varies between  $0[2\pi]$  and  $\pi[2\pi]$ . Thus, an increase of two orders of magnitude in the sensitivity level is obtained. The variation of the population with the relative phase reveals also that coherent control of the non-adiabatic transitions is possible. The effect of non-adiabatic transitions can also be observed on the spectrum of the transmitted field. The two pulses are co-propagating and cannot be spatially separated. The equation of propagation concerns with the total field according to equation II.4 with  $f_d + \frac{\theta_p}{\theta_d} f_p e^{-i\Delta T}$  instead of  $f_d$ . The spectrum at the exit of the medium with the laser and medium parameters  $\theta_p = 0,01$ ,  $\theta_d = 60$ ,  $\Delta = 10$ ,  $\tau_{pd} = 1$ ,  $\tau/\tau_d = 25$ ,  $e_{\text{disp}} = 0,75$  is shown in Fig. 5. Here, the phase shift is fixed at  $\beta = 0[2\pi]$ . We represent in dashed and solid lines, the spectrum of the two pulses at the entrance and at the exit respectively, whereas dotted lines show the spectrum of the weak field when it propagates alone. The frequency components created during propagation and due to non-adiabatic effects are very small but sufficient to disturb the weak field. The latter probes only the spectral region located around its own spectrum and is sensitive to the population left by the driving field.

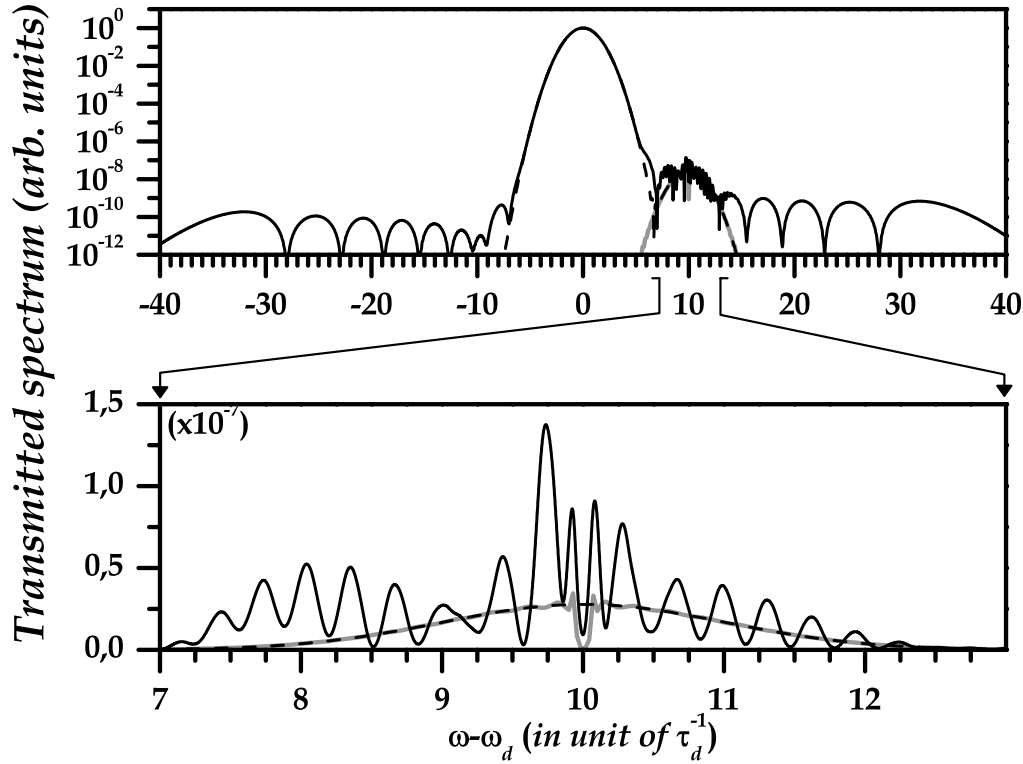


FIG. 5 : Transmitted intensity spectrum for the two-pulse sequence (co-propagating case). In dash and solid lines are represented the two pulse spectrum at the entrance and at the exit respectively. In grey line is represented the weak field spectrum at the exit when propagating alone. The parameters are  $\theta_d = 60$ ,  $\theta_p = 0,01$  and  $\Delta = 10$ ,  $\tau_{pd} = 1$ ,  $\tau/\tau_d = 25$ , and  $e_{disp} = 0,75$  and the phase shift is  $\beta = 0[2\pi]$ . The dip that appears at resonance frequency corresponds to absorption effects which are very small. The dip width is limited here by the time window used for Fourier transform operation.

As the two pulses are separated in time domain, we observe oscillations in the spectrum. The period of oscillations is given by  $(\tau/\tau_d)^{-1} = 0,05$  in accordance with the numerical simulations. When varying the phase shift, the fringes scroll but the contrast remains the same.

### III.2 - Case of cross-propagating pulses

In the case where  $\delta\vec{k} \neq 0$ , the two pulses can be spatially separated. We assume that the angles between the wave vectors and the  $z$  axis are small enough. The spatial periodicity of the excitation allows the series expansion of the amplitudes  $a = \sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} a^{(m)} e^{im\delta\vec{k}\vec{r}}$ ,  $b = \sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} b^{(m)} e^{im\delta\vec{k}\vec{r}}$ . In the perturbative regime, the dipole can be developed up to the first

order as :

$$a^*b \simeq a^{*(0)}b^{(0)} + (a^{*(0)}b^{(1)} + a^{*(-1)}b^{(0)}) e^{i\delta\vec{k}\vec{r}} + (a^{*(1)}b^{(0)} + a^{*(0)}b^{(-1)}) e^{-i\delta\vec{k}\vec{r}} \quad (\text{III.23})$$

The equations of propagation for the two fields can now be written as :

$$\partial_Z f_d = i \frac{e_{\text{disp}}}{\theta_d} \rho_d \quad (\text{III.24})$$

$$\partial_Z (f_p e^{-i\Delta T}) = i \frac{e_{\text{disp}}}{\theta_p} \tau_{pd} \rho_p \quad (\text{III.25})$$

With  $\rho_d = a^{*(0)}b^{(0)}$  and  $\rho_p = a^{*(0)}b^{(1)} + a^{*(-1)}b^{(0)}$  representing the radiated dipoles in the driving and propagating fields directions respectively. The amplitudes  $a^{(m)}$ ,  $b^{(m)}$  are related to the amplitudes  $\alpha_{\pm}^{(m)}$ ,  $m = 0, \pm 1$  in the adiabatic states by the relation II.8 taken at the corresponding series order. From equations (II.9b, III.19, III.20), we get the following equations for the amplitudes  $\alpha_{\pm}^{(m)}$ ,  $m = 0, \pm 1$  :

$$i\partial_T \begin{pmatrix} \alpha_{-}^{(0)} \\ \alpha_{+}^{(0)} \end{pmatrix} = M_{\text{adiab}} \begin{pmatrix} \alpha_{-}^{(0)} \\ \alpha_{+}^{(0)} \end{pmatrix} \quad (\text{III.26a})$$

$$i\partial_T \begin{pmatrix} \alpha_{-}^{(\pm 1)} \\ \alpha_{+}^{(\pm 1)} \end{pmatrix} = M_{\text{adiab}} \begin{pmatrix} \alpha_{-}^{(\pm 1)} \\ \alpha_{+}^{(\pm 1)} \end{pmatrix} + V^{(\pm)} \begin{pmatrix} \alpha_{-}^{(0)} \\ \alpha_{+}^{(0)} \end{pmatrix} \quad (\text{III.26b})$$

In the limit of our study, the detuning is assumed to be important (see condition III.16). Thus, the effects of non-adiabatic transitions are weak. Their small contribution to the dipole amplitude is mainly contained in the first term of the dipole expansion in equation III.23, which radiates in the direction of the strong field. The weak field in cross propagating configuration is therefore insensitive to these effects.

We distinguish now between two cases. First, if the two pulses are time separated (driving field acting first), the system returns back to its initial configuration when the weak field is applied (so the weak field doesn't experiences light shifts effects). The population in the excited state left by the driving pulse is due to the non-adiabatic effects only and it doesn't play any role when we consider the field radiated in the weak field direction. Hence, the weak field doesn't feel any modifications at all by the driving field. This case is represented in Fig. 6 for the same parameters as those of Fig. 5 (co-propagating case) in which the non-adiabatic effects dramatically disturb the spectrum of the pulse sequence.

The second case corresponds to the situation where the two pulses overlap temporally. Here, the situation changes radically. The propagating pulse whose frequency matches the atomic frequency of the two-level system is no longer resonant when the strong field is applied. The dipole amplitude is strongly modified. This effect can be visualized using the dipole representation in the dressed state (cf. Fig. 3.). Eight transition paths contribute to the dipole. Four correspond to absorption from the ground state ( $1 \rightarrow 3$ ,  $1 \rightarrow 4$ ,  $2 \rightarrow 3$ ,  $2 \rightarrow 4$ ) and four others correspond to emission paths ( $3 \rightarrow 1$ ,  $3 \rightarrow 2$ ,  $4 \rightarrow 1$ ,  $4 \rightarrow 2$ ). The oscillation frequencies associated for these paths are  $\omega_d$  ( $1 \leftrightarrow 3$ ,  $2 \leftrightarrow 4$ ),  $\omega_d + \Omega$  ( $2 \leftrightarrow 3$ ) and  $\omega_d - \Omega$  ( $1 \leftrightarrow 4$ ). The propagating pulse resonant is no longer tuned accordingly except



in a specific situation corresponding to paths  $1 \leftrightarrow 4$  and restricted to time  $T$  before the application of the driving field ( $\Omega(-\infty) = \Delta$ ,  $\omega_p = \omega_d + \Delta$ ). This necessitates  $\tau_{pd} > 1$ . If all the population is initially in the ground state, only the absorption path  $1 \rightarrow 4$  is efficiently involved. All these conclusions allow us to simplify considerably the expression of the radiated dipole  $a^{*(0)}b^{(1)} + a^{*(-1)}b^{(0)}$  (relation III.25). The absorption paths are contained in the term  $a^{*(0)}b^{(1)}$  and emission paths in  $a^{*(-1)}b^{(0)}$ . From relation II.8, the contribution  $K_{14}$  to the dipole and corresponding to path  $1 \rightarrow 4$  is

$$K_{14} = \alpha_-^{*(0)} \alpha_+^{(1)} \cos^2 \phi \quad (\text{III.27a})$$

During propagation the strong non-resonant driving field is only slightly distorted. In this situation, we can approximate the zero order amplitudes  $\alpha_{\pm}^{(0)}$  by their expression in the adiabatic limit :

$$\alpha_-^{(0)}(T, Z) \simeq e^{-i \int_{-\infty}^T \frac{\Delta - \Omega}{2} dT'} \quad (\text{III.28a})$$

$$\alpha_+^{(0)}(T, Z) \simeq 0 \quad (\text{III.28b})$$

Using relations II.10, III.28a, and III.28b the resolution of equation III.26b gives the following expression for the amplitude  $\alpha_+^{(1)}$  :

$$\alpha_+^{(1)}(T, Z) \simeq -ie^{-i \int_{-\infty}^T \frac{\Delta - \Omega}{2} dT'} \int_{-\infty}^T V_{+-}^{(+)}(T', Z) e^{-i \int_{T'}^T \Omega dT''} dT' \quad (\text{III.29})$$

with  $V_{+-}^{(+)} = \langle + | V^{(+)} | - \rangle$ .

Using relations III.27a, III.28a, and III.29, we finally obtain :

$$K_{14} = -i \cos^2 \phi \int_{-\infty}^T V_{+-}^{(+)}(T', Z) e^{-i \int_{T'}^T \Omega dT''} dT' \quad (\text{III.30})$$

This final expressions can be understood using the dipole representation in the dressed state (see Fig. 3). The transition path associated with  $K_{14}$  connects the levels (1) and (4). Theses levels are associated with different adiabatic states,  $|-\rangle$  and  $|+\rangle$  for  $|a\rangle$  and  $|b\rangle$  respectively but with same weight  $\cos \phi$ . The light-shift between theses levels is  $\Omega$  and the coupling is realized by the non diagonal elements of the coupling matrix  $V_{+-}^{(+)}$ . Expression III.30 represents thus the dipole amplitude calculated at the first order perturbation theory.

The behaviour of  $K_{14}$  can be explained as follows. We assume for sake of simplicity a perfect overlap between the two pulses ( $\tau \simeq 0$ ) and we note by  $-T_0$  and  $T_0$  the solutions of the equation  $\Omega - \Delta = \tau_{pd}^{-1}$ . The interval between these two times represents the time during which the light-shift between the adiabatic states induced by the strong driving field becomes sufficiently strong to make the weak field non-resonant. Using relations III.20 and III.30, the dipole amplitude  $K_{14}$  for  $-T_0 \leq T \leq T_0$  can be approximated by the following term corresponding to the resonant contribution that built up from from  $-\infty$  to  $T_0$  ( $K_{14} \simeq K_{14}^{(\text{res})}$ ) :

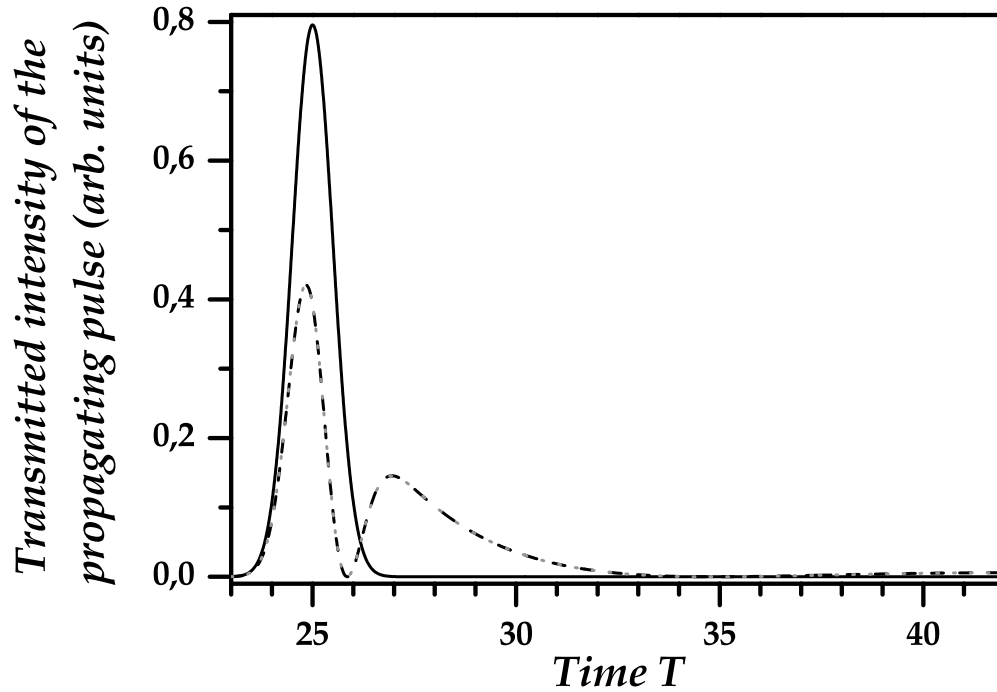


FIG. 6 : Case of cross-propagating time-delayed pulses. Intensity of the propagating pulse at the entrance (solid line), at the exit with strong driving field acting (dashed line) and without the strong field (gray dotted line). No difference is significant on the temporal profile. The parameters are the same than in Fig. 5

$$K_{14}^{(\text{res})} = \frac{i\theta_p}{2\tau_{pd}} \cos^4 \phi e^{-i\Delta T} e^{-i \int_{-\infty}^T (\Omega - \Delta) dT'} \int_{-\infty}^{-T_0} f_p(Z, T') dT' \quad (\text{III.31})$$

Here, we neglect the non-resonant contributions. However, these effects can be observable if we detect the radiated intensity. In this situation, the interference that occurs between the resonant and non-resonant excitation amplitudes strongly modifies the behaviour of the radiated field intensity and the excited state population as well [7]. We represent in Fig. 7-a the time dependence of the dipole amplitude  $|K_{14}|$  and  $|\rho_p|$  (at  $Z = 0$ ) for the parameters  $\theta_d = 60$ ,  $\Delta = 10$ ,  $\theta_p = 0,01$ , and  $\tau = 0$ . The amplitudes are almost identical. The amplitude  $|K_{14}|$  increases initially but as the light shifts due to the strong field become important, it stops to increase any further. The non-resonant contribution is visible here through the oscillations that appear and that result from the interference process discussed above. When the driving field vanishes, the dipole amplitude increases again until the end of the weak field. Note that compared to the case when the weak propagating field is alone and for which the asymptotic value of the dipole amplitude is  $|K_{14}|(T \gg 1) = |K_{14}^{(\text{res})}|(T \gg 1) = 5 \times 10^{-3}$ , the presence of the driving field results in a significant reduction of this asymptotic value (factor  $\approx 3$ ).

The transmitted probe field is obtained by adding the incident field to the radiated

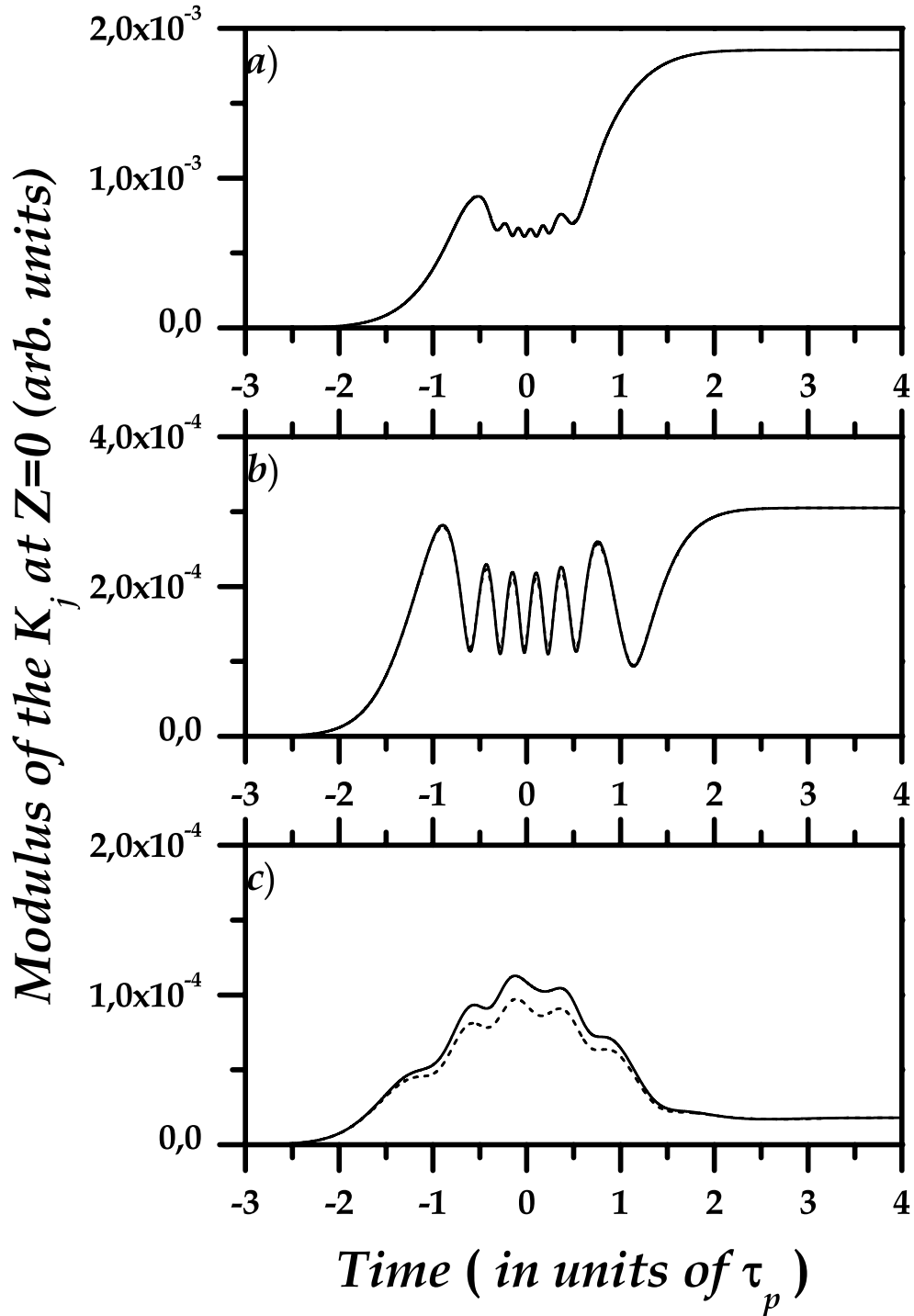


FIG. 7 : Cross-propagation case. Time dependence at the entrance of the medium of the dipole amplitudes  $|\rho_p|$  (solid line) and  $|K_{14}|$  (dotted line) corresponding to the contribution of all the paths and path  $1 \rightarrow 4$  and  $1 \rightarrow 3$  of Fig. 3 respectively. Here,  $\theta_d = 60$ ,  $\theta_p = 0,01$  and  $\Delta = 10$ , and  $\tau = 0$  (perfect overlap). The situations (a), (b), (c) correspond to the case  $\tau_{pd} = 2, 1$  and  $0,5$  respectively. When the weak field is alone, the asymptotic value for  $|\rho_p|$  is  $5 \times 10^{-3}$ . Application of the strong field reduces significantly this value, and the more the driving field is larger than the propagating one ( $\tau_{pd} \searrow$ ), the more the amplitude  $|K_{14}|$  differs from  $|\rho_p|$ .

one. In Fig. 8-a we represent the incident weak pulse, the transmitted pulse when no driving field is applied and the transmitted pulse in the presence of the driving field, in dotted, dashed and solid lines respectively. The parameters are the same as that of Fig. 7-a. Two features characterize the action of the strong field. First, the oscillations at long time scale, due to the atomic dispersion are strongly reduced because the driving field significantly reduces the dipole amplitude and thus the radiated intensity (factor  $\approx 9$ ). The energy is concentrated in the central peak as a result of it. Secondly, tiny oscillations appear in the central peak. The combined action of the driving field and the propagation effects result in the transformation of a smooth pulse at the entrance of the medium into a modulated pulse at the exit. To highlight this spectacular behaviour of the field, we derive an analytical expression for the transmitted propagating field in the situation where we neglect the distortion of the driving field during propagation and where the radiated field is small in comparison with the incident one. This latter condition is satisfied if the dispersion parameter is small and/or when the pulse widths of the two pulses are comparable, so that the population transferred to the excited state is substantially reduced. The atom feels then only the action of the incident electric field. The  $Z$  dependence of the atomic quantities  $a$  and  $b$  can then be neglected. If we restrict the value of the dipole to the resonant part of  $K_{14}$  ( $\rho_p \simeq K_{14}^{(\text{res})}$ ) and using equations III.25 and III.31, the transmitted intensity  $I_p(1, T) = |\epsilon_{0p} f_p(1, T)|^2$  can be approximated for  $-T_0 \leq T \leq T_0$  at the lowest order by the following expression :

$$I_p(1, T) \simeq I_{0p} \left[ |f_p(0, T)|^2 - e_{\text{disp}} \cos^2 \phi \cos \left( \int_{-\infty}^T (\Omega - \Delta) dT' - \beta \right) \left| \int_{-\infty}^{-T_0} f_p(0, T') dT' \right| \right] \quad (\text{III.32})$$

with  $I_{0p} = |\epsilon_{0p}|^2$ .

This formula shows explicitly that the transmitted pulse is modulated with an interference phase which depends on the light-shift induced on the transition  $1 \rightarrow 4$  in the dressed state representation (see Fig. 3). These oscillations may be shifted by varying the relative phase-shift  $\beta$ . An important remark should be made here. The physical origin of these oscillations is different from those observed on the dipole amplitudes (and excited state population). These latter originate from the interference between resonant and non-resonant contributions to the excitation probability while the oscillations observed on the transmitted pulse are the result of the interference between the incident field whose frequency is fixed and the resonant part of the dipole radiation whose frequency is time dependent through its light-shift dependence. These oscillations visible on the probe transmitted pulse represent thus a mapping of the light-shift induced by the strong driving field on the system. This situation can occur also in a three-level system and has been studied in detail in [7]. It can also be compared with the propagation of a chirped pulse in a two level system where the interference between the incident and radiated fields reveals the sweeping of the instantaneous frequency of the chirped pulse whereas here the interference reveals the sweeping of the atomic resonance frequency [13]. The contrast depends on both the dispersion parameter  $e_{\text{disp}}$  and the relative pulse duration  $\tau_{pd}$  through the time  $T_0$ .

When the relative pulse duration varies, the resonant contribution to the dipole  $K_{14}^{(\text{res})}$  changes. For instance, if at the entrance of the medium the propagating pulse is shorter than

the driving one  $\tau_{pd} < 1$ , the light-shift becomes important when the weak field acts. The latter, thus becomes non-resonant and the resonant part of the radiating dipole vanishes ( $T_0 < 1$ ). In the opposite case, when  $\tau_{pd} > 1$ , the weak propagating field excites resonantly the system before the driving field freezes this interaction. The corresponding radiation induced by this non vanishing contribution interfere with the incident field to give rise to the observed oscillations. These situations are represented in Fig. 8. In (a), is the situation discussed above with  $\tau_{pd} = 2$  ( $\theta_d = 60$ ,  $\Delta = 10$ , and  $\theta_p = 0,01$ ), in (b) and (c) we have  $\tau_{pd} = 1$  and  $0,5$  respectively. The dispersion parameter are  $e_{\text{disp}} = 0,5$ ;  $1$  and  $2$  respectively so that the optical density  $\propto e_{\text{disp}}/\tau_{pd}$  is the same for all the cases and the comparison can be done. We see that the oscillations almost disappear as  $\tau_{pd} = 1$ : the Stark effect induced by the strong driving field is very efficient to freeze the evolution of the system and the transmitted pulse in (c) is almost restored identical to the incident pulse. We recognize here the analogous situation of electromagnetically induced transparency (EIT) where the combination of the stark shift and the dark resonance makes the pulse insensitive to absorption [14]. Here, in addition to absorption (spectrum bandwidth much larger than the absorption width), the ultrashort pulse is immune to the dispersion and thus to propagation effects. Finally, for the same parameters as that of Fig. 8-b and 8-c we represent in 7-b and 7-c the time dependence of the dipole amplitude  $|K_{14}|$  and  $|\rho_p|$  (at  $Z = 0$ ) (same scale than 7-b). Here, two effects appear. First, the resonant contribution decreases with the pulse width of the weak pulse. The non-resonant contributions have then an increasing importance that makes the interference between the two parts of the dipole (resonant and non-resonant) more and more contrasted. This strongly contrasts with the behaviour of the oscillations of the transmitted pulse that disappear when the resonant contribution decreases. This example shows clearly the different nature of the two kind of oscillations. Secondly, the difference between the dipole  $\rho_p$  and the transition amplitude  $K_{14}$  increases when the propagating field becomes narrower than the driving field. The transitions paths in the dipole representation of figure 3 that were neglected up to now, has an increasing contribution with respect of  $|K_{14}^{(\text{res})}|$  as this last one decreases. This situation highlights the complexity of the level-system structure when driven by a strong field.

#### IV - Conclusion

We have studied in this paper the effects of non-adiabatic transitions and transient light-shifts induced by a strong non-resonant ultrashort pulse in an optically dense assembly of two level atoms. These effects can be probed by a resonant weak pulse, mutually coherent with the strong driving field. We have distinguished between the co-propagating and the cross-propagating cases characterized by different results. In the co-propagating case, we were interested in the population behaviour at the entrance and in the spectral changes at the exit. Even for small inverse Massey parameter, the non-adiabatic effects were shown to be enhanced by the interference process and were revealed in this way in both the population and the transmitted spectrum. In the cross-propagating case, the weak field is insensitive to the non-adiabatic effects but its temporal shape is strongly affected by the light-shifts when the two pulses overlap temporally. In the dressed-state representation, we identify the radiation emitted on the transition connecting the two extremely shifted levels

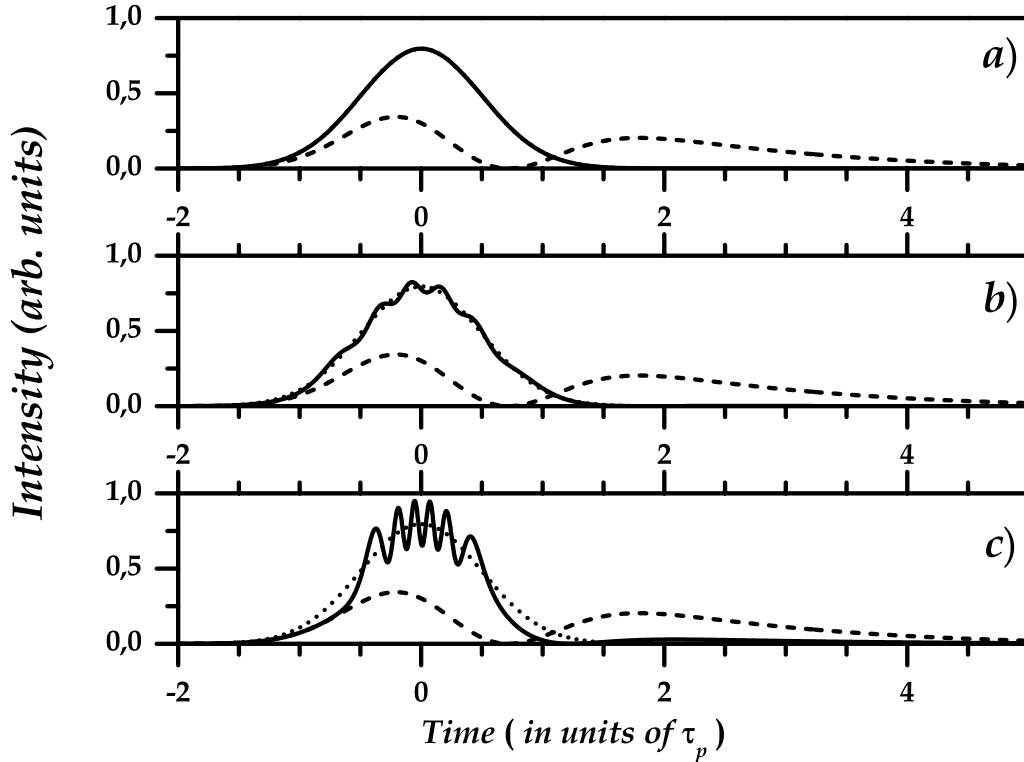


FIG. 8 : Cross-propagation case. Envelope of the propagating weak pulse at the entrance (dotted line), at the exit when alone (dashed line) and at the exit when the strong driving field is applied (solid line). The situations (a), (b), (c) correspond to the case  $\tau_{pd} = 2, 1$  and  $0,5$  respectively. The others parameters are the same than in Fig. 7.

(1 and 4 in Fig. 3) as the one responsible for this effect. The other transitions were shown to give only small non-resonant contribution to the radiating dipole. The shape of the transmitted weak pulse depends strongly on its duration with respect to the strong driving field. When it is longer, a strong modulation is exhibited in the temporal profile that maps out the light-shift induced by the strong field while the long time range tail is significantly reduced. When the driving pulse is longer, the light-shifts prevent the propagating field from interacting efficiently with the atomic system and the propagating pulse is transmitted with almost no distortion. The medium turns to be transparent to the light pulse in this latter case.

These results show that an optically dense two-level system driven by a strong pulse can be used as a pulse-shaper that can modify the temporal shape of an ultrashort weak pulse on a time scale shorter than the pulse duration. This is not possible with conventional devices [12]. These modifications can be varied through the laser and medium characteristics (optical depth, relative phase-shift, driving field intensity, relative pulse durations) providing a large range of control parameters. Extension of this work to the situation where the propagating pulse is strong is an interesting perspective since the self phase modula-

tion may generate new spectral bands and thus structures at much shorter time scale are expected.

## References

- [1] I. I. Rabi, Phys. Rev. **51**, 652 (1937); H. M. Gibbs, Phys. Rev. A **8**, 446 (1973)
- [2] D. Grichkowsky, J. A. Armstrong, Phys. Rev. A **6**, 1566 (1972); D. Grichkowsky, Phys. Rev. A **7**, 2096 (1973)
- [3] B. R. Mollow, Phys. Rev. A **5**, 2217 (1972); F. Y. Wu, S. Ezekiel, M. Ducloy, B. R. Mollow, Phys. Rev. Letters **38**, 1077 (1977); P. L. Knight and P. W. Milonni, Phys. Rep. **66**, 21 (1980)
- [4] R. W. Boyd, M. G. Graner, P. Narum *et al.*, Phys. Rev. A, **24**, 411 (1981); R. E. Silverans, G. Borghs, P. De Bisschop *et al.*, Phys. Rev. Letters **55**, 1070 (1985); M. T. Gruneisein, K. R. Mac Donald, R. W. Boyd, Journal of the Optical Society of America B **5**, 123 (1988); M. T. Gruneisein, K. R. Mac Donald, A. L. Gaeta *et al.*, Phys. Rev. A **40**, 3464 (1989); Qilin Wu, D. J. Gauthier, T. W. Mossberg, Phys. Rev. A **49**, R1519 (1994); Changjiang Wei and Neil B. Manson, Phys. Rev. A **49**, 4751 (1994); Z. Ficek, H. S. Freedorf, Phys. Rev. A **53**, 4275 (1996); Andrew S. M. Windsor, Changjiang Wei, Scott A. Holmstrom *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3045 (1998); Tai Hyun Yun, Jong Rak Park, Physics Letters A **264**, 142 (1999); A. Lipsich, S. Bareiro, A. M. Akulshin *et al.*, Phys. Rev. A **61**, 053803 (2000); R. S. Benink, R. W. Boyd, C. R. Stroud *et al.*, Phys. Rev. A **63**, 033804 (2001)
- [5] J. E. Golub, T. W. Mossberg, Phys. Rev. Letters **59**, 2149 (1987); Ning Lu, P. R. Berman, Phys. Rev. A **36**, 3845 (1987); V. S. Egorov, V. N. Lebedev, I. B. Mekhov *et al.*, Phys. Rev. A **69**, 033804 (2004)
- [6] P. R. Berman, Lixin Yan, Keng-Hwee Chiam *et al.*, Phys. Rev. A **57**, 79 (1998)
- [7] J.C. Delagnes and M. A. Bouchene, Phys. Rev. A **69**, 063813 (2004)
- [8] M. A. Bouchene, Phys. Rev. A **66**, 065801 (2002)
- [9] N. Rosen, C. Zener, Phys. Rev. A **40**, 502 (1932), N.V Vitanov, B.W. Shore, L. Yatsenko, Optics com., 199, 117(2001)
- [10] L. Allen, J. H. Eberly, "Optical resonance and two-level atoms", Willey, New York, 1975
- [11] R. W. Boyd, "Nonlinear optics", Academic Press, San Diego, 1992
- [12] A. M. Weiner, Rev. Sci. Instr. **71**, 1929 (2000)
- [13] J. E. Rothenberg and D. Grischkowsky, J. Opt. Soc. Am. B **2**, 626 (1985)
- [14] K. J. Koller, A. Imamoglu, S. E. Harris, Phys. Rev. Letters, **66**, 2593 (1991)

### IV.2.3 Excitation "bichromatique" : Montage expérimental et résultats

La mise en œuvre expérimentale de l'excitation "bichromatique", telle que nous l'avons décrite dans la partie IV.2.2, nécessite deux sources synchrones indépendantes (impulsions cohérentes entre elles). Idéalement, afin d'éviter tout effet de moyenne spatiale aussi bien en configuration colinéaire que non colinéaire (*walk-off spatial*), les diamètres des deux faisceaux doivent être notablement différents. Quand les faisceaux forment un angle, leur recouvrement spatial varie le long de l'échantillon. Lorsque le profil spatial transverse du champ fort a un diamètre plus important que celui du champ faible, il présente alors des variations lentes par rapport au faisceau sonde et le processus dépend peu du recouvrement.

Nous n'avons pas la possibilité de réaliser une telle expérience. Nous avons alors utilisé un façonneur d'impulsions afin de produire les deux impulsions à partir d'une impulsion large bande (voir IV.2.3.1). La géométrie du système nous contraint à travailler en configuration colinéaire (et avec des faisceaux de même diamètre). Les mesures temporelles ne sont alors pas réalisables car les faisceaux ne sont pas séparés spatialement. Nous nous sommes donc concentrés sur la recherche d'une signature spectrale des phénomènes physiques décrits dans l'article, qui sont eux nettement appréciables.

#### IV.2.3.1 Montage expérimental

Nous avons réalisé l'expérience d'excitation "bichromatique" d'une vapeur atomique de rubidium. Le CPA (*Chirped Pulse Amplifier*) délivre des impulsions intenses qui sont dirigées vers le façonneur d'impulsions. Un masque d'amplitude (uniquement) est appliqué sur le spectre des impulsions. La transmittance en amplitude  $T(\omega)$  du masque est programmée de sorte à découper deux raies dans le spectre initial du CPA centré autour de 799,3 nm. Chacune de ces raies, l'une dite "faible" et l'autre "intense", peut être indépendamment modifiée en intensité, largeur et position (longueur d'onde centrale). On a  $T(\omega)$  qui est donnée par

$$T(\omega) = a_W e^{-\left(\frac{\omega - \omega_W}{\delta\omega_W}\right)^2} + a_S e^{-\left(\frac{\omega - \omega_S}{\delta\omega_S}\right)^2}$$

où l'indice  $W$  se rapporte à la raie faible (weak) et l'indice  $S$  à la raie intense (strong). On suppose que  $\delta\omega_W + \delta\omega_S < |\omega_W - \omega_S|$ , c'est-à-dire que les raies ne se recouvrent pas. Si on modélise le spectre en amplitude initial du CPA par une gaussienne de largeur  $\delta\omega_0$  centrée à  $\omega_0$ , le spectre mis en forme  $\tilde{A}(\omega)$  pour  $\omega_0 \simeq \omega_W$  est égal à

$$\tilde{A}(\omega) \simeq \tilde{A}_0(\omega_0) \left( a_W e^{-\left(\frac{\omega_W - \omega_0}{\delta\omega_0}\right)^2} e^{-\left(\frac{\omega - \omega_W}{\delta\omega_W}\right)^2} + a_S e^{-\left(\frac{\omega - \omega_S}{\delta\omega_S}\right)^2} \right)$$

où  $\tilde{A}_0(\omega_0)$  est l'amplitude spectrale maximale de l'impulsion initiale du CPA. On a supposé que  $\delta\omega_W, \delta\omega_S \ll \delta\omega_0$  de sorte que le spectre incident ne varie pas trop sur le profil de raie programmée. En pratique on a  $\delta\omega_W/\delta\omega_0 \sim \delta\omega_S/\delta\omega_0 \approx 0, 1-0, 3$  et  $|\omega_W - \omega_S| \sim \delta\omega_0 \approx 4-5$  nm.

La raie faible, d'amplitude effective  $a_{W,\text{eff}} = a_W \exp(-(\omega_W - \omega_0)^2/\delta\omega_0^2)$ , est approximativement accordée sur la transition  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$  du rubidium à 794,76 nm. La



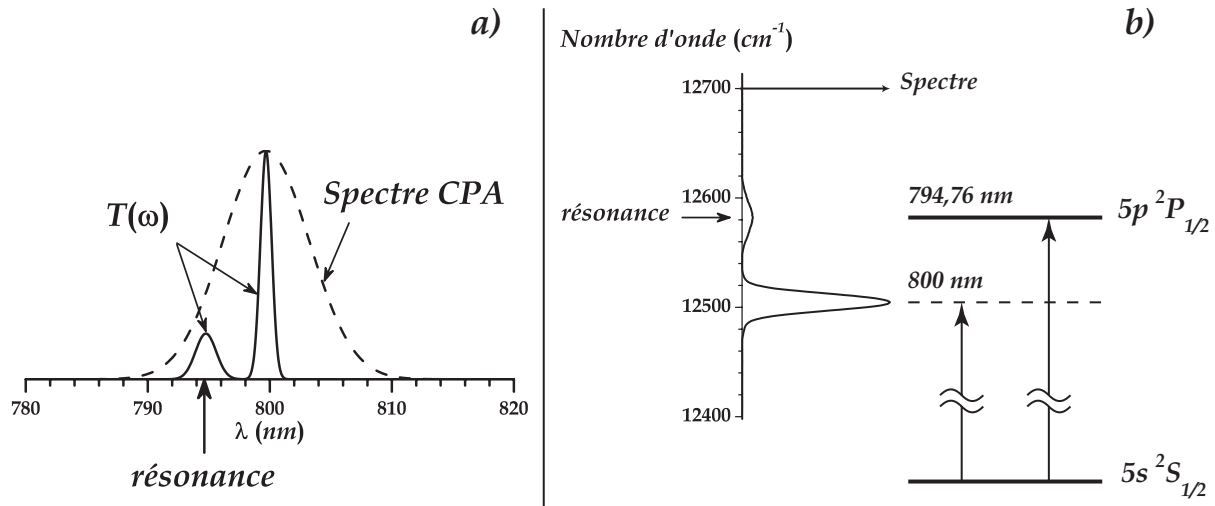


FIG. IV.11 – Excitation "bichromatique" - Production des impulsions : En a) : La transmittance  $T(\omega)$ , correspondant aux amplitudes spectrales des deux impulsions, est programmée dans le façonneur d'impulsions. En b) : La raie faible est accordée sur la transition  $5s\ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p\ ^2P_{1/2}$ . La raie forte est centrée autour de 799,3 nm et peut être accordée.

raie intense est centrée autour de 799,3 nm. Le contraste maximal<sup>‡</sup> du dispositif de mise en forme étant de l'ordre de 2 à 5%, on ajoute au plan de Fourier des bloqueurs de faisceau afin d'augmenter le contraste. Ils sont disposés de part et d'autre du spectre pour couper au mieux le spectre résiduel dans les zones où la transmittance programmée est sensiblement nulle.

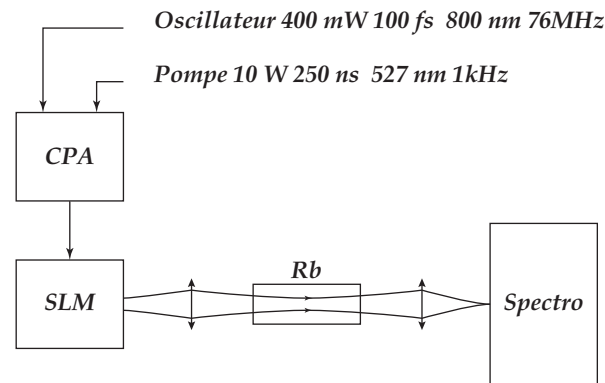


FIG. IV.12 – Excitation "Bichromatique" - Montage Expérimental : Le CPA délivre des impulsions qui sont mises en forme avec le SLM qui fonctionne en masque d'amplitude. Le masque appliqué découpe deux raies, l'une faible et résonante, l'autre intense et non résonante. Les deux impulsions correspondantes sont dirigées vers le four où elles se propagent dans une vapeur atomique de rubidium. Le spectre transmis est collecté avec un spectromètre de résolution 0,05 nm.

<sup>‡</sup> On programme une transmittance  $T(\omega) = 0$  sur tous les pixels. Le contraste est alors donné par le rapport entre l'intensité transmise et l'intensité incidente prises toutes deux à la longueur d'onde centrale.

Après mise en forme, le faisceau peut être vu comme une superposition de deux impulsions, l'une faible et résonante, l'autre intense et non résonante. Suivant les largeurs programmées, on obtient des impulsions de 500 fs à 1,5 ps (790 fs  $\leftrightarrow$  1 nm à 795 nm). On peut obtenir de quelques centaines de nanojoules jusqu'à 1  $\mu$ J par impulsion pour l'impulsion faible et 4  $\mu$ J pour l'impulsion forte. Le système de mise en forme ne fonctionne dans le cas présent qu'en amplitude et n'introduit aucun délai entre les deux impulsions ( $\tau = 0$ ). Le fonctionnement même du système de mise en forme, c'est-à-dire de la ligne à dispersion nulle, impose que les deux impulsions sont générées en configuration colinéaire ( $\eta = 0$ ). Le faisceau est dirigé vers le four, où est produite la vapeur atomique dans laquelle la paire d'impulsions interagit et se propage. Après propagation, le faisceau transmis est analysé à l'aide d'un spectromètre (0,05 nm de résolution).

### IV.2.3.2 Résultats (Spectres)

Comme nous l'avons dit plus haut, l'utilisation du système de mise en forme impose que les deux impulsions interagissent en configuration colinéaire  $\eta = 0$  ( $\delta\vec{k} \simeq 0$ ). Par ailleurs le délai est fixé à  $\tau = 0$ . Pour les conditions expérimentales dans lesquelles nous travaillons, l'intensité du champ fort est telle que l'angle de Rabi du champ fort est estimé à  $\theta_S \sim \pi - 2\pi$ . Pour l'impulsion qui joue le rôle de champ faible, nous avons  $\theta_W \sim 0, 1\pi - 0, 3\pi$ , ce qui ne correspond pas rigoureusement aux conditions de champ faible. Les simulations montrent cependant que pour ces valeurs de  $\theta_W$  les résultats ne sont pas modifiés de manière importante par rapport au cas d'un champ réellement faible (pour  $\theta_W = 0, 2\pi \simeq 0, 628$  on a  $\sin\theta_W \simeq 0, 588$  soit une erreur de 7%, l'approximation de champ faible reste donc encore satisfaisante).

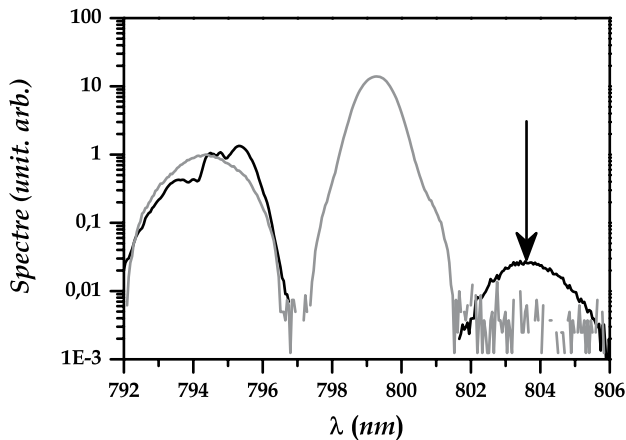


FIG. IV.13 – Excitation "bichromatique" - Triplet de fréquence et fréquence image : Le spectre incident représenté en gris comporte deux raies, l'une centrée sur la résonance, l'autre centrée à 799,3 nm. Après propagation, le spectre transmis présente une nouvelle composante basse fréquence peu intense signalée par une flèche, et qui correspond à la fréquence image de la résonance par rapport au champ fort, c'est-à-dire la composante basse fréquence du triplet de fréquence associé au processus à quatre ondes [91].

#### IV.2.3.2.1 Fréquence image

Quand on analyse le spectre en détail, on peut noter la présence d'une composante spectrale de très faible intensité et située dans la partie basse fréquence du spectre. Cette composante, signalée sur la figure IV.13 par une flèche, est centrée autour de 803,5 nm. Cette raie est générée à  $\Delta$  du champ fort, c'est-à-dire symétriquement à la position de la

résonance située elle à  $-\Delta$  par rapport à la longueur d'onde centrale du champ fort (figure IV.14). Cette nouvelle composante correspond ici - dans le cas où la raie intense est décalée vers le rouge par rapport à la résonance - à la raie basse fréquence du triplet de fréquence associé l'émission paramétrique de la fréquence image dans le processus à trois photons  $\omega_S + \omega_S - \omega_W$ . Dans les conditions de l'expérience, le champ fort n'est pas assez intense pour créer des bandes latérales importantes. Ainsi, seules les nouvelles composantes du pic centré à la fréquence image  $2\omega_S - \omega_0$  apparaissent sur le spectre transmis.

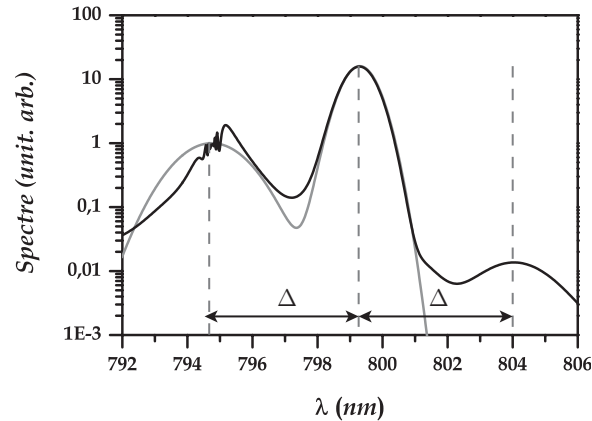


FIG. IV.14 – Fréquence image - Simulations numériques ( $\theta_W = 0,3\pi$ ,  $\theta_S = 2,1\pi$ ,  $\Delta = 10$ ,  $\tau_{WS} = 1,5$  et  $e_{\text{disp}} = 5$ ) : Le champ fort n'est pas suffisamment intense pour générer des bandes latérales. Seule la fréquence image, symétrique de la résonance, apparaît dans la partie basse fréquence à  $\Delta$  du champ fort.

#### IV.2.3.2.2 Dissymétrie

Le spectre de l'impulsion faible (figure IV.15) est modifié considérablement et présente une dissymétrie. Cette dissymétrie se caractérise par une "amplification" des fréquences situées dans l'intervalle entre la résonance et la fréquence centrale du champ fort, et une atténuation des fréquences situées de l'autre côté de la résonance. Par ailleurs, bien que difficilement visibles à cause de la résolution du spectromètre, des oscillations sont présentes sur le spectre au voisinage de la résonance. Ces deux caractéristiques se retrouvent sur le spectre calculé numériquement avec des paramètres proches des conditions expérimentales (figure IV.16). La dissymétrie observée sur le spectre transmis, peut être plus clairement visualisée en calculant le spectre différentiel entre le spectre transmis et le spectre incident. Le spectre transmis peut être affecté soit par les déplacements lumineux soit par les transitions non adiabatiques. Dans le cas présent, cette dissymétrie ne résulte que d'un effet de déplacement lumineux. En effet quand on effectue la simulation  $\mathfrak{E}$ , en faisant abstraction des termes de transition non adiabatique, c'est-à-dire en imposant  $\partial_T \theta = 0$ , les résultats

$\mathfrak{E}$  Sur les figures IV.14, IV.16 et IV.18, l'artefact spectral (trou) autour de la résonance provient du calcul de la transformée de Fourier rapide (FFT). L'opération est effectuée sur une fenêtre temporelle limitée d'environ 135 ps, qui conduit à un trou relativement important à résonance mais qui n'as pas de signification physique.

sont inchangés. Il est d'autant plus surprenant de noter que cette dissymétrie présente une allure de type dispersif.

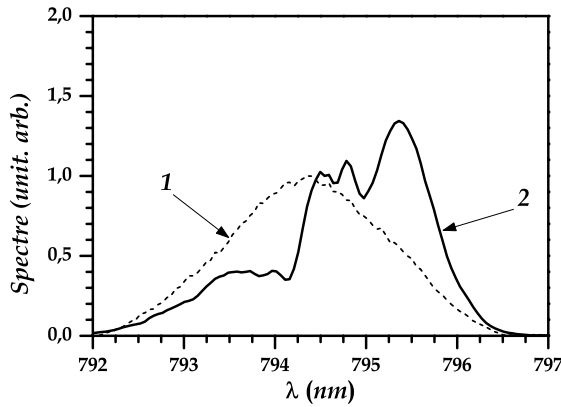


FIG. IV.15 – Spectres expérimentaux de la raie faible : 1) Spectre de l'impulsion incidente. 2) Spectre de l'impulsion transmise. La raie intense est centrée à 799,3 nm (largeur 1,1 nm FWHM,  $E_S = 4,3 \mu\text{J}$ )

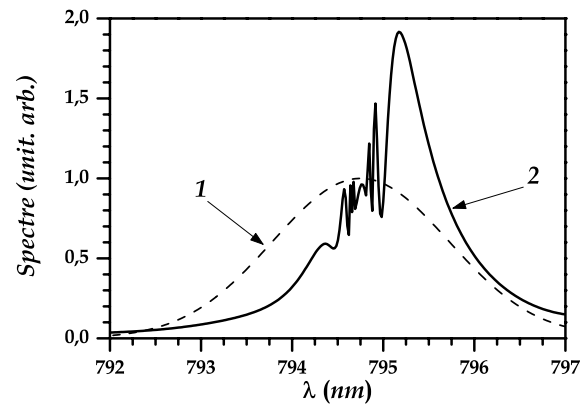


FIG. IV.16 – Spectres théoriques de la raie faible : 1) Spectre de l'impulsion incidente. 2) Spectre de l'impulsion transmise. Les paramètres sont identiques à ceux de la figure IV.14.

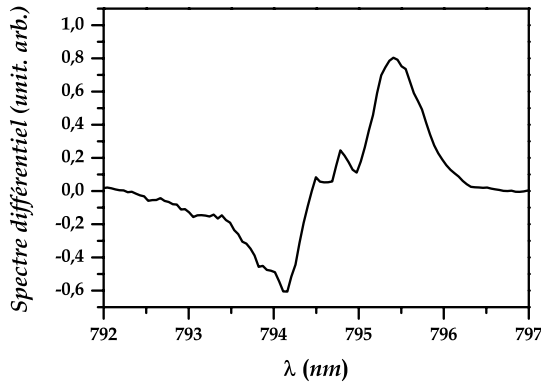


FIG. IV.17 – Spectre différentiel calculé à partir des spectres expérimentaux de la figure IV.15 ((2)-(1))

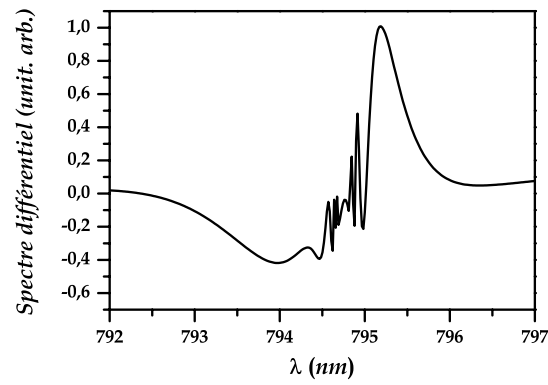


FIG. IV.18 – Spectre différentiel calculé à partir des spectres théoriques de la figure IV.16 ((2)-(1))

Nous pouvons évaluer et comprendre cette dissymétrie ainsi que l'amplification, en calculant le spectre du champ faible après propagation. Dans l'expression du dipôle total (cf article équation II.15) :

$$a^*b = (|\alpha_-|^2 - |\alpha_+|^2) \sin \theta \cos \theta + \alpha_-^* \alpha_+ \cos^2 \theta - \alpha_- \alpha_+^* \sin^2 \theta \quad (\text{IV.33})$$

seule la contribution  $\alpha_-^{*(0)} \alpha_+^{(1)} \cos^2 \theta$  est émise au premier ordre à la fréquence du champ faible. On suppose que les déplacements lumineux sont faibles par rapport à  $\Delta = (\omega_0 -$

$\omega_S)\tau_S$  <sup>h</sup> et que le champ faible est réel à l'entrée du milieu. En utilisant les relations III.20, III.27 et III.28 (cf article) et en prenant la transformée de Fourier de l'équation de propagation III.25, on obtient l'évolution du spectre du champ faible :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{f}_W}{\partial Z}(Z, \omega - \omega_0) &\simeq -\frac{e_{\text{disp}}}{2} \times \dots \\ &\times \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^T e^{i(\omega - \omega_0)\tau_S T} \left( 1 + \frac{i\theta_S^2}{2\Delta} \int_T^{T'} f_S^2(T'') dT'' \right) f_W(T') dT' dT \end{aligned} \quad (\text{IV.34})$$

Nous pouvons développer le terme entre parenthèse et écrire

$$\frac{\partial \tilde{f}_W}{\partial Z}(Z, \omega - \omega_0) = M_1(\omega) + M_2(\omega) \quad (\text{IV.35})$$

où  $M_1(\omega)$  et  $M_2(\omega)$  sont donnés par :

$$M_1(\omega) = -\frac{e_{\text{disp}}}{2\tau_S} \tilde{f}_W(Z, \omega - \omega_0) \left[ \pi\delta(\omega - \omega_0) + \mathcal{P} \left( \frac{i}{\omega - \omega_0} \right) \right] \quad (\text{IV.36})$$

et

$$M_2(\omega) = -i \frac{\theta_S^2 e_{\text{disp}}}{4(\omega_0 - \omega_S)\tau_S} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^T \int_T^{T'} e^{i(\omega - \omega_0)\tau_S T} f_S^2(T'') f_W(T') dT'' dT' dT \quad (\text{IV.37})$$

Tout d'abord, dans  $M_1(\omega)$  le terme proportionnel à  $\mathcal{P}(i/(\omega - \omega_0))$  est identique à la dispersion résonante (chapitre II équation II.51). Nous pouvons donc associer cette contribution à la phase spectrale  $\phi_d(\omega)$  de la dispersion résonante. Nous avons :

$$M_1(\omega) \simeq \phi_d(\omega) = -\frac{e_{\text{disp}}}{2(\omega - \omega_0)\tau_S} \quad (\text{IV.38})$$

Ensuite, lorsqu'on écrit  $M_2(\omega)$ , sous forme de produits de convolution dans l'espace des fréquences, il a une expression assez compliquée (8 termes : 4 réels, 4 imaginaires). Si on tient compte de l'absorption à résonance ( $\tilde{f}_W(0) \simeq 0$ ),  $M_2(\omega)$  se simplifie et on obtient (en ne gardant que les termes qui affectent l'amplitude du spectre.)

$$M_2(\omega) \simeq -\Gamma(\omega) \tilde{f}_W(Z, \omega - \omega_0) \quad (\text{IV.39})$$

---

<sup>h</sup> Quand les déplacements lumineux sont faibles nous pouvons écrire :

$$e^{i \int_{-\infty}^T \Omega(T'') dT''} \simeq e^{i\Delta T} e^{i \frac{\theta_S^2}{2\Delta} \int_{-\infty}^T f_S^2(T'') dT''} \simeq e^{i\Delta T} \left( 1 + i \frac{\theta_S^2}{2\Delta} \int_{-\infty}^T f_S^2(T'') dT'' \right)$$

avec

$$\Gamma(\omega) = \frac{\pi\theta_S^2 \tilde{I}_S(0) e_{\text{disp}}}{4(\omega - \omega_0)(\omega_0 - \omega_S)\tau_S^3} \quad (\text{IV.40})$$

où  $\tilde{I}_S(0) = \tau_S \int_{-\infty}^{+\infty} f_S^2(T) dT$ . Nous pouvons alors intégrer l'équation IV.34, en utilisant les relations IV.38 et IV.40 et en omettant les autres termes du développement de  $M_2(\omega)$ . Nous trouvons que le spectre transmis est donné par :

$$\tilde{f}_W(1, \omega - \omega_0) = \tilde{f}_W(0, \omega - \omega_0) e^{i\phi_d(\omega)} e^{-\Gamma(\omega)} \quad (\text{IV.41})$$

La figure IV.19 représente  $|\tilde{f}_W(1, \omega - \omega_0)|$ . Elle laisse bien apparaître une dissymétrie comparable aux observations expérimentales (NB :  $|\tilde{f}_W(1, \omega - \omega_0)|$  est représenté en fonction de la pulsation, la dissymétrie semble inversée mais l'amplification concerne bien la partie basse fréquence). Les oscillations à résonance ne sont pas prises en compte dans le calcul.

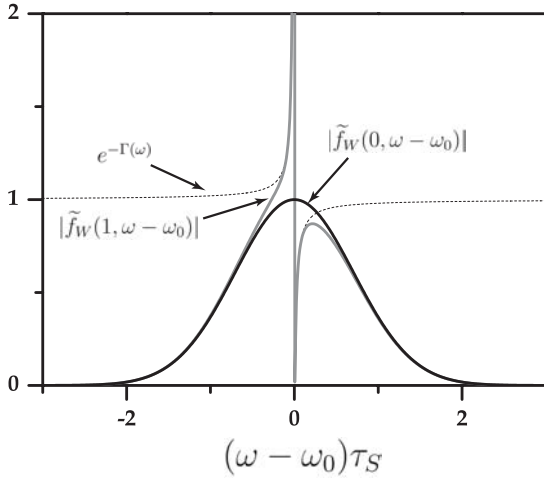


FIG. IV.19 – Spectre transmis - Allure de la dissymétrie (calculé pour  $e_{\text{disp}} = 1$  et  $q_S e_{\text{disp}} = 0,01$ ) : La dissymétrie observée expérimentalement est bien reproduite hors résonance. La partie haute fréquence du spectre est atténuée et la partie basse fréquence est amplifiée. Les oscillations à résonance ne sont pas prises en compte dans le calcul.

Cette approche permet de mettre clairement en avant un effet particulier du champ fort. En effet, nous pouvons noter que :

$$\Gamma(\omega) = q_S \phi_d(\omega) \quad (\text{IV.42})$$

avec  $q_S = \frac{\pi\theta_S^2 \tilde{I}_S(0)}{4(\omega_0 - \omega_S)\tau_S^3}$ . Nous sommes donc en présence d'un phénomène tout à fait original d'un couplage dispersion-gain [92] (gain négatif quand il y a absorption) induit par le champ fort. En effet, en l'absence de champ fort, le système est purement dispersif. En revanche, sous l'action du champ fort, le système présente une amplification (ou une absorption)  $e^{-\Gamma(\omega)}$  qui fait apparaître la fonction de dispersion  $\phi_d(\omega)$ . Cependant, bien que la dissymétrie soit qualitativement reproduite hors de la résonance, les oscillations au voisinage de la résonance (figure IV.16 et IV.18) sont elles par contre absentes. Cela provient des termes que nous avons négligés dans l'expression de  $M_2(\omega)$ .

### IV.2.3.2.3 Dépendance avec la puissance du champ fort

La figure IV.20 représente les spectres transmis de la raie faible obtenus pour différentes valeurs de l'énergie de la raie intense. Sur la figure IV.21 nous avons reporté l'évolution du spectre en fonction de l'énergie  $E_S$  du champ fort pour différentes longueurs d'onde représentées par des traits pointillés sur la figure IV.20. L'évolution est dans chaque cas sensiblement linéaire avec l'énergie de l'impulsion. Comme le montre les équations IV.40 et IV.41, le spectre en sortie

$$|\tilde{f}_W(1, \omega - \omega_0)|^2 = |\tilde{f}_W(0, \omega - \omega_0)|^2 e^{-2\Gamma(\omega)} \quad (\text{IV.43})$$

pour les basses fréquences ( $\Gamma(\omega) < 0$ ) varie proportionnellement à  $e^{\beta\theta_S^2}$ , où  $\beta$  est une fonction qui dépend de  $\omega$  mais pas de l'énergie  $E_S$  de l'impulsion de contrôle proportionnelle à  $\theta_S^2$ . Lorsque cette énergie n'est pas trop grande, on peut linéariser  $e^{\beta\theta_S^2} \simeq 1 + \beta\theta_S^2$  et le spectre transmis varie donc linéairement avec l'énergie du champ fort (dans la gamme d'énergies dont nous disposons) comme illustré sur la figure IV.21.

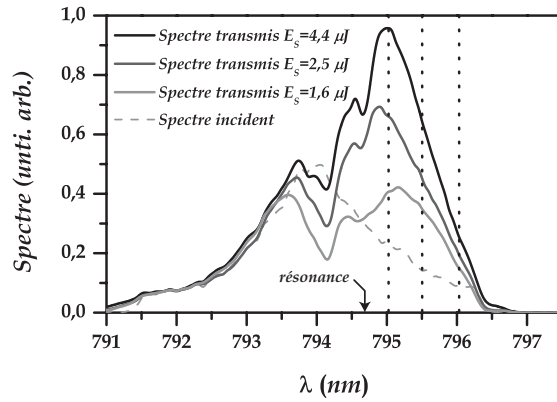


FIG. IV.20 – Spectre de l'impulsion faible transmise pour  $E_S=1,6 \mu\text{J}$ ,  $2,5 \mu\text{J}$  et  $4,4 \mu\text{J}$  ( $\lambda_S = 799,3 \text{ nm}$ ,  $\Delta\lambda_S = 1,1 \text{ nm}$  FWHM). Les pointillés matérialisent les longueurs d'onde  $\lambda = 795,02 \text{ nm}$ ,  $795,5 \text{ nm}$  et  $796,03 \text{ nm}$ .

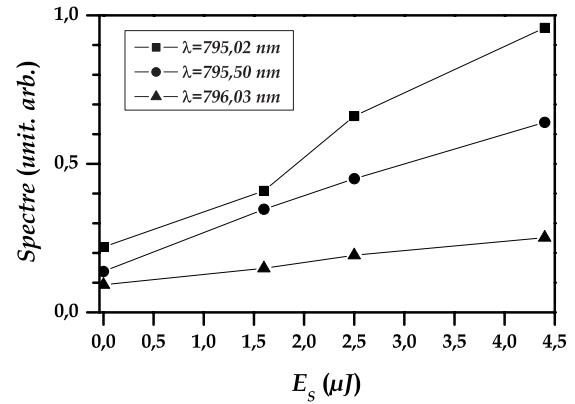


FIG. IV.21 – Spectre de l'impulsion faible transmise en fonction de l'énergie  $E_S$  du champ fort pour  $\lambda = 795,02 \text{ nm}$ ,  $795,5 \text{ nm}$  et  $796,03 \text{ nm}$  avec  $E_S=0, 1,6 \mu\text{J}$ ,  $2,5 \mu\text{J}$  et  $4,4 \mu\text{J}$  ( $\lambda_S = 799,3 \text{ nm}$ ,  $\Delta\lambda_S = 1,1 \text{ nm}$  FWHM).

### IV.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les modifications induites par un champ fort, sur les effets de propagation ressentis par une impulsion faible, se propageant dans un système à deux et à trois niveaux.

Dans le système à trois niveaux, le déplacement lumineux transitoire induit par le champ fort pendant la durée de l'impulsion, place le système hors résonance. La population transférée par le champ faible dans l'état excité cesse d'évoluer. Elle conserve, en première approximation sa valeur avant application du champ fort (exceptées les oscillations dues aux excitations hors résonance observées sur le plateau). Durant toute la durée d'action du champ fort, la population constante voit sa phase modulée par le déplacement Stark. Cela signifie que la fréquence instantanée du dipôle qui émet le champ rayonné, varie au cours du temps pendant la durée de l'impulsion faible. Le champ incident et le champ rayonné se recouvrent temporellement, et puisque leurs fréquences diffèrent, un battement apparaît et module l'intensité de l'impulsion transmise. On retrouve une situation analogue à la propagation d'impulsions à dérive de fréquence, où le terme de battement entre le champ incident de fréquence variable et le champ rayonné de fréquence constante, est donné par  $\int (\omega_i(t') - \omega_{21}) dt'$ . Avec le déplacement lumineux, on peut écrire le battement sous une forme analogue à la précédente  $\int (\omega_i - \omega_{21}(t')) dt'$ . Cette fois, c'est la fréquence instantanée du dipôle qui varie sous l'effet du déplacement et provoque l'apparition d'une bande latérale dans le spectre de l'impulsion transmise.

L'analyse que nous avons menée, repose essentiellement sur des idées théoriques qui montrent les possibilités de mise en forme d'impulsions directement dans le domaine temporel par le biais du champ de contrôle. Du point de vue pratique, ces méthodes de mise en forme alternatives présentent certains avantages. Le fait de travailler dans un gaz permet d'une part l'utilisation de fortes puissances et ouvre d'autre part des possibilités de mise en forme pour des gammes de fréquences assez grandes. Il est par ailleurs plus facile de mettre en forme des impulsions infrarouges intenses qui peuvent alors être utilisées pour manipuler selon le principe que nous avons montré, des impulsions faibles dans le visible, l'UV voire l'UV extrême [87]. On peut en effet imaginer une mise en évidence expérimentale dans une vapeur de plomb  $^{208}\text{Pb}$ . Dans ce cas, la transition résonante avec le champ faible à mettre en forme est la transition  $6s^26p^2\ ^3P_0 \rightarrow 6s^26p7s\ ^3P_1$  à environ 283 nm. La transition pilotée par le champ fort est la transition  $6s^26p7s\ ^3P_1 \rightarrow 6s^26p7p\ ^3D_1$  à 1065 nm [82, 93]. Ces deux longueurs d'onde sont en effet assez faciles à produire avec des sources picosecondes accordables, qui permettent plus facilement d'obtenir des angles de Rabi importants. Les conditions d'adiabaticité sont alors facilement réalisables et des angles de Rabi de l'ordre de  $\theta_W = 55$  peuvent être obtenus avec des impulsions de 3 nJ ayant une durée  $\tau_S = 20$  ps et focalisées sur un diamètre de 20  $\mu\text{m}$ . L'intensité obtenue dans ce cas ( $\approx 1,5 \times 10^7$   $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) est par ailleurs suffisamment faible pour éviter tout processus d'absorption multiphotonique. Cette technique semble prometteuse puisqu'elle permet de mettre en forme directement dans le domaine temporel, et qu'elle s'accompagne en plus d'un enrichissement important du contenu spectral des impulsions (un dispositif passif ne permet pas l'amplification ou la création de composantes spectrales). Cependant, le nombre de paramètres ajustables (de degrés de liberté) et donc la complexité de la mise en forme obtenue restent



*a priori* limités par rapport aux dispositifs classiques.

En excitation "bichromatique", nous avons mis en évidence deux situations originales qui montrent des phénomènes différents. Nous avons premièrement mis en évidence d'un point de vue théorique que cette configuration était sensible aux transitions non adiabatiques induites par le champ fort. Bien que faible [77], la population transférée dans l'état excité de manière non adiabatique a une signature spectrale claire sur le spectre de l'impulsion sonde transmise. Cependant, nous n'étions pas expérimentalement dans les conditions adéquates pour observer le phénomène. Deuxièmement, lorsque les deux impulsions se recouvrent temporellement et forment un angle ( $\eta \neq 0$ ,  $\tau = 0$ ), on retrouve les mêmes phénomènes dus aux déplacements lumineux que dans le système à trois niveaux. Pour des moments dipolaires équivalents, ces effets sont deux fois plus importants. Les deux niveaux de la transition sont en effet déplacés en sens opposés et donnent une contribution double à l'intégrale Stark. Dans tous les cas (trois niveaux et excitation bichromatique), lorsque la durée du champ fort augmente (pour une amplitude maximale donnée), le déplacement Stark place le système hors résonance sur des durées importantes. On prévient ainsi l'apparition d'une distorsion, sur le profil temporel de l'impulsion faible, due aux effets de propagation. On se retrouve dans une situation de "transparence" du point de vue de la dispersion résonante.

Enfin, il y a relativement peu d'études sur les propriétés spectrales autour des résonances qui ont été réalisées en régime transitoire [74, 94, 95]. Dans l'expérience que nous avons réalisée, les résultats que nous avons obtenus ont mis en évidence un phénomène de couplage gain-dispersion induit par le champ fort, visible sur le spectre de l'impulsion sonde.



## Chapitre V

# PROPAGATION DANS UN SYSTÈME ATOMIQUE PILOTÉ PAR UN CHAMP FORT. CAS D'UN SYSTÈME À DEUX NIVEAUX DÉGÉNÉRÉS.

Dans le chapitre précédent nous nous sommes intéressés aux déplacements lumineux transitoires induits par un champ fort. Nous avons vu comment ces déplacements agissent sur la forme temporelle et spectrale d'une impulsion faible cohérente se propageant de manière résonante avec une transition sur laquelle sont induits les déplacements. Le battement entre le champ incident et le champ rayonné était alors contrôlé par la phase dynamique présente sur le dipôle atomique du fait de l'action du champ fort.

Dans ce chapitre nous allons également utiliser un champ fort résonant dont l'effet ne se limitera pas aux déplacements lumineux. Il permettra surtout de créer un mélange entre deux états, qui sera connecté par le champ faible à un autre couple d'états eux-mêmes fortement mélangés par le champ fort. Cette situation est réalisée par exemple lorsque la transition  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$  du rubidium est excitée avec un champ fort et un champ faible polarisés orthogonalement.

Dans un premier temps, nous établirons les équations d'évolution du système atomique sous l'action des deux impulsions. Nous montrerons alors l'apparition d'un phénomène d'interférences entre des chemins quantiques impliquant l'absorption et l'émission de photons du champ faible. Nous nous placerons ensuite dans la base adiabatique liée au champ fort. Ceci nous permettra de donner une interprétation simplifiée de l'évolution du système. Nous appliquerons cette analyse aux résultats expérimentaux et théoriques que nous avons obtenus sur l'énergie et la forme temporelle de l'impulsion faible transmise en fonction de paramètres d'excitation (phase relative, énergie du champ fort, recouvrement temporel entre les impulsions). Nous montrerons que ces interférences permettent d'effectuer un véritable contrôle de l'énergie et de la forme temporelle de l'impulsion faible.

## V.1 Modèle théorique

### V.1.1 Schéma d'excitation

Le milieu étudié est une vapeur atomique de rubidium. Le champ de contrôle polarisé linéairement est résonant sur la transition  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$  du rubidium à 794,76 nm

et s'exprime comme

$$\vec{E}_F = \vec{e}_X(A_F e^{-i\omega_L t} + c.c.)/2$$

La modification des propriétés optiques est sondée à l'aide d'une impulsion faible. Ce champ sonde est également résonant et est polarisé orthogonalement à l'axe de polarisation au champ fort. Le champ faible est donné par :

$$\vec{E}_f = \vec{e}_Y(A_f e^{i\phi} e^{-i\omega_L t} + c.c.)/2$$

où  $\phi = \omega_L \tau$  avec  $\tau$  le délai entre les deux impulsions. Nous considérons à l'entrée du milieu ( $z = 0$ ) des impulsions de formes temporelles identiques  $A_f(z = 0, t) = \beta A_F(z = 0, t - \tau)$  avec  $\beta \ll 1$ .

Remarque : Dans les conditions où nous nous trouvons (épaisseur optique faible et champ résonant),  $A_f$  n'accumule qu'une phase additionnelle négligeable au cours de la propagation. Le champ fort n'est quant à lui pratiquement pas déformé si bien que  $A_F(z, t) = A_F(0, t)$ . Ces hypothèses permettent de simplifier la compréhension du problème. Cependant dans les simulations que nous avons réalisées nous prenons en compte tous les effets physique, et elles sont donc exactes.

Prenons la direction de polarisation du champ fort comme axe de quantification  $\pi$  (figure V.1). Le champ faible polarisé orthogonalement à cet axe de quantification, se décompose alors en polarisations circulaires gauche et droite  $\sigma_{\pm}$  définies par les vecteurs de polarisation :

$$\vec{e}_{\pm} = \mp(\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y)/\sqrt{2} \quad (\text{V.1})$$

Le système étudié comporte quatre niveaux dégénérés deux à deux (figure V.2). D'après les règles de sélection liées au choix des axes <sup>a</sup>, on a  $\Delta M_J = 0$  pour le champ fort qui connecte les états de même  $M_J$ , et le champ faible connecte les états qui satisfont à la règle de sélection  $\Delta M_J = \pm 1$ .

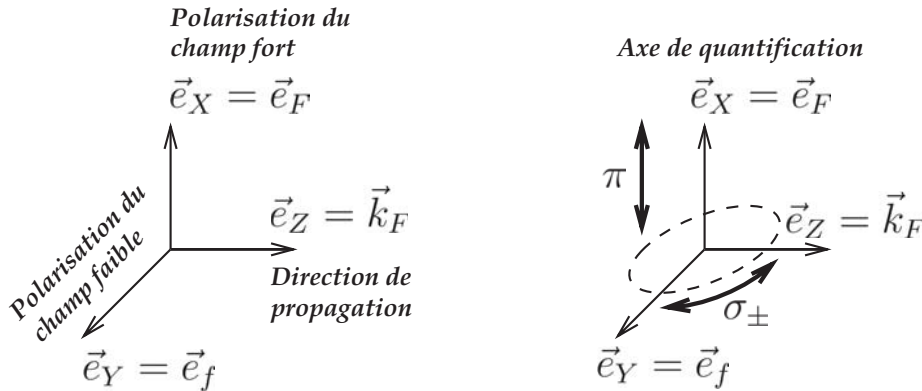


FIG. V.1 – Définition des axes de polarisation et de quantification : Les ondes gauche et droites sont définies par rapport à l'axe de quantification  $\pi$  selon  $\vec{e}_X$ . Elles ne sont pas identiques aux ondes gauche et droite définies par rapport au vecteur d'onde  $\vec{k}_F = \vec{e}_Z$  qui définit la direction de propagation.

<sup>a</sup> Les résultats sont inchangés par une rotation quelconque de l'ensemble du système autour de l'axe de propagation

NB : Dans le rubidium, il faut en toute rigueur tenir compte des états du niveau spin-orbite  $5p \ ^2P_{3/2}$ , situé à environ 14 nm du  $5p \ ^2P_{1/2}$  ( $\lambda_{J=3/2} = 780,027$  nm et  $\lambda_{J=1/2} = 794,76$  nm). Afin de ne pas compliquer l'exposé, nous ignorerons dans un premier temps le rôle de ces états. Pour dégager les phénomènes physiques principaux nous nous restreignons donc à l'étude d'un système à quatre niveaux dégénérés deux à deux. Cela revient à considérer que le couplage spin-orbite est très important, de sorte que le temps de précession spin-orbite  $T_{SO}$  est négligeable. En d'autres termes le retournement du spin est instantané et n'influe pas la dynamique du système. Le rôle exact du niveau  $5p \ ^2P_{3/2}$  apparaîtra ultérieurement dans ce chapitre, lorsque nous étudierons les effets en fonction de la puissance du champ fort.

### V.1.2 Description dans la base stationnaire

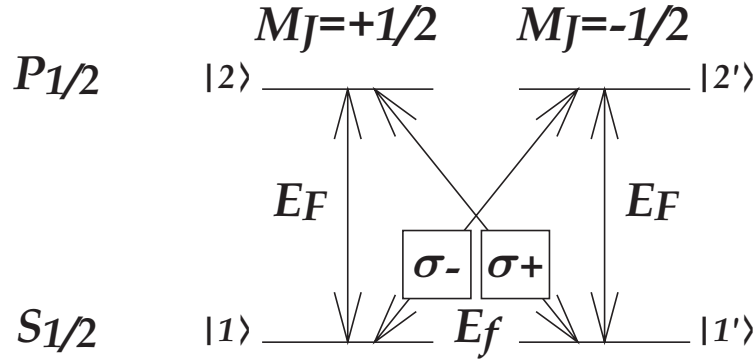


FIG. V.2 – Diagramme d'énergie simplifié : Les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  correspondent à  $M_J = \frac{1}{2}$  et les états  $|1'\rangle$  et  $|2'\rangle$  à  $M_J = -\frac{1}{2}$ . Le choix des axes de quantification selon la polarisation du champ fort impose une décomposition du champ faible en composante  $\sigma_+$  et  $\sigma_-$  qui couplent respectivement les états  $|1'\rangle$  à  $|2\rangle$  et  $|1\rangle$  à  $|2'\rangle$ .

Les états  $|1\rangle$ ,  $|1'\rangle$ ,  $|2\rangle$  et  $|2'\rangle$  décrits dans la figure V.2, définissent la base d'états propres dans laquelle on décrit le système atomique. Dans cette base, la fonction d'onde  $|\psi\rangle$  du système est définie comme :

$$|\psi(t)\rangle = a_1(t) |1\rangle + a_2(t) e^{-i\omega_L t} |2\rangle + a_{1'}(t) |1'\rangle + a_{2'}(t) e^{-i\omega_L t} |2'\rangle$$

L'équation de Schrödinger dérivée dans le cas d'une interaction résonante ( $\Delta = 0$ ) et en ne gardant que les termes qui satisfont à la RWA, permet d'obtenir l'équation d'évolution des amplitudes de probabilité :

$$i\partial_t \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ a_{1'} \\ a_{2'} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{\mu_{12} A_F}{2\hbar} & 0 & -\frac{\mu_{12'} A_f}{2\hbar} e^{-i\phi} \\ -\frac{\mu_{12} A_F}{2\hbar} & 0 & -\frac{\mu_{12'} A_f}{2\hbar} e^{i\phi} & 0 \\ 0 & -\frac{\mu_{1'2} A_f}{2\hbar} e^{-i\phi} & 0 & -\frac{\mu_{1'2'} A_F}{2\hbar} \\ -\frac{\mu_{1'2} A_f}{2\hbar} e^{i\phi} & 0 & -\frac{\mu_{1'2'} A_F}{2\hbar} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ a_{1'} \\ a_{2'} \end{pmatrix} \quad (\text{V.2})$$

L'examen du diagramme (figure V.2) montre immédiatement qu'il existe plusieurs chemins quantiques susceptibles d'interférer. On peut citer par exemple les chemins  $|1\rangle \rightarrow$

$|2\rangle \rightarrow |1'\rangle \rightarrow |2'\rangle$  et  $|1\rangle \rightarrow |2'\rangle$ , ou encore les chemins  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |1'\rangle$  et  $|1\rangle \rightarrow |2'\rangle \rightarrow |1'\rangle$ . Nous pouvons donc en déduire qu'en fonction de la phase relative  $\phi$  entre les deux champs  $E_F$  et  $E_f$ , les quantités atomiques vont présenter une oscillation à  $2\phi$ . En effet, si on calcule par exemple l'amplitude  $a_{2'}(t)$  transférée dans l'état  $|2'\rangle$  avec une expression perturbative (on traite les enveloppes des deux champs  $A_F$  et  $A_f$  comme des perturbations), on trouve :

$$a_{2'}(t) = k_1(t)e^{i\phi} + k_2(t)e^{-i\phi}$$

où

$$k_1(t) = i\frac{\mu_{12'}}{2\hbar} \int_{-\infty}^t A_f(t') dt'$$

et

$$k_2(t) = -i\frac{\mu_{12}\mu_{21'}\mu_{1'2'}}{8\hbar^3} \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t'} \int_{-\infty}^{t''} A_F(t') A_f(t'') A_F(t''') dt''' dt'' dt'$$

Chacune des contributions  $k_1(t)$  et  $k_2(t)$  correspond respectivement aux chemins  $|1\rangle \rightarrow |2'\rangle$  et  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |1'\rangle \rightarrow |2'\rangle$ . La population dans l'état  $|2'\rangle$  est alors donnée par :

$$|a_{2'}|^2(t) = |k_1(t)|^2 + |k_2(t)|^2 - 2|k_1(t)k_2(t)| \cos 2\phi$$

On trouve bien une oscillation à  $2\phi$  de la population. Cette dépendance en  $2\phi$  n'est pas seulement présente sur les quantités atomiques ; comme elle apparaît sur les dipôles les interférences auront un effet visible sur la forme temporelle et l'intensité du champ faible. Elle apparaît également sur l'intensité du champ faible. De plus, elle est dans tous les cas le résultat de l'interférence entre un chemin d'absorption ( $|1\rangle \rightarrow |2'\rangle$ ) qui donne le terme en  $e^{i\phi}$  et un chemin d'émission  $|2\rangle \rightarrow |1'\rangle$  qui donne le terme en  $e^{-i\phi}$  (faisant partie du chemin  $|1\rangle \rightarrow [|2\rangle \rightarrow |1'\rangle] \rightarrow |2'\rangle$ ) représentés sur la figure V.3a.

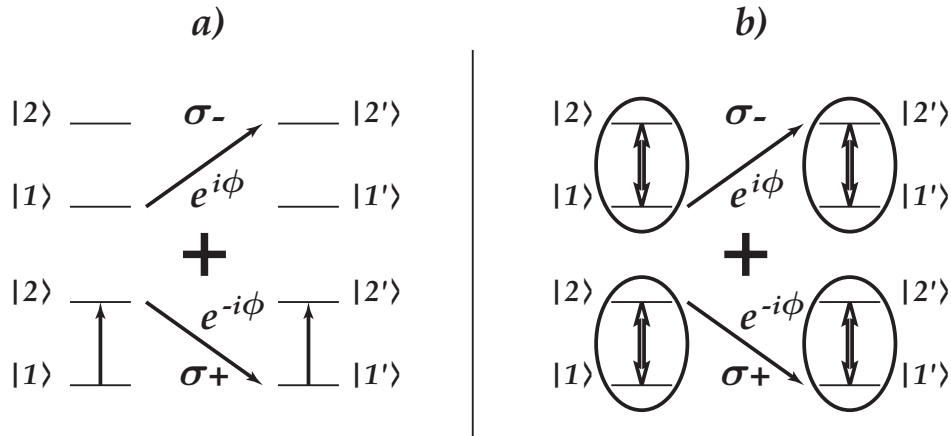


FIG. V.3 – Chemin d'absorption et d'émission - Interférences à  $2\phi$  : En a) interférence des chemins en régime perturbatif. En b) interférence des chemins en régime de couplage fort par le champ de contrôle.

Nous pouvons rapprocher ce phénomène de celui des franges dites de types "franges de Ramsey temporelles". Ces franges sont par exemple obtenues sur la population  $|b|^2$  de l'état excité d'une transition (système à deux niveaux  $|a\rangle - |b\rangle$ ) illuminée par deux impulsions lasers peu intenses séparées d'une délai  $\tau$ . Si on suppose les deux impulsions de même intensité, on obtient une modulation de la population de la forme  $|b|^2 \propto (1 + \cos \phi)$  où la phase  $\phi = (E_b - E_a)t/\hbar$  est la phase d'évolution libre dans l'état  $|b\rangle$ . Dans les "franges de Ramsey temporelles", la modulation apparaît suite à l'interférence de deux chemins d'absorption.

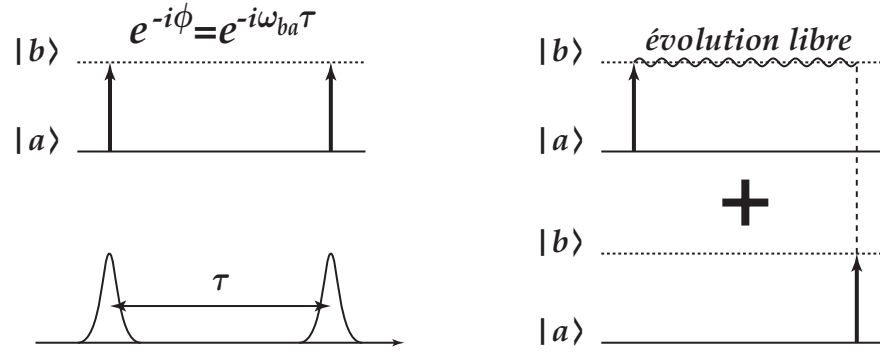


FIG. V.4 – Franges de Ramsey - Interférences entre deux chemins d'absorption

Le calcul perturbatif que nous venons de donner pour illustrer l'existence de ces oscillations, masque un point très important : les oscillations peuvent avoir une amplitude considérable. D'une manière équivalente, cela revient à dire que les chemins d'émission et d'absorption représentés sur la figure V.3b sont d'importances égales. Ceci vient du fait que sous l'action du champ fort les deux niveaux  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  sont fortement couplés (le traitement perturbatif du champ fort n'est alors pas adapté). Le champ fort résonant couple et mélange fortement  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ . Ces états sont alors peuplés en moyenne avec des poids identiques. De la même manière les états  $|1'\rangle$  et  $|2'\rangle$  sont eux aussi mélangés par le champ fort avec des poids identiques. Les chemins d'absorption et d'émission du champ faible ont alors des amplitudes comparables, et couplent les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ , aux états  $|1'\rangle$  et  $|2'\rangle$  eux mêmes fortement couplés par le champ fort (comme  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ ).

#### REMARQUES IMPORTANTES :

En régime perturbatif, les oscillations ne peuvent pas être observées facilement car elles résultent dans ce cas de l'interférence entre un processus au premier ordre et un processus au troisième ordre. Il est nécessaire d'avoir un champ fort qui mélange suffisamment les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  pour équilibrer les poids du chemin d'émission et d'absorption, et rendre ainsi ces interférences observables.

Par ailleurs, contrairement aux "franges de Ramsey temporelles" où l'interférence se produit entre deux chemins décalés dans le temps, et laisse apparaître la phase d'évolution libre, ce processus fait intervenir deux chemins qui sont synchrones.

Après ces considérations qualitatives, nous allons maintenant calculer plus en détails, l'évolution des quantités atomiques ainsi que celle du champ électrique afin de mettre en

avant d'autres particularités de ce schéma d'excitation.

### V.1.3 Description dans la base adiabatique

Dans la mesure où le champ faible vient sonder les modifications induites par le champ de contrôle supposé réel ( $A_F = A_F^*$ ), nous considérons les termes de couplage  $V_{ij} = -\mu_{ij}A_f/2\hbar$  dus à la sonde, comme une perturbation par rapport au hamiltonien total de l'atome et champ fort : cet hamiltonien  $H$  donné par

$$H = \begin{pmatrix} \boxed{\begin{matrix} 0 & -\frac{\mu_{12}A_F}{2\hbar} \\ -\frac{\mu_{12}A_F}{2\hbar} & \Delta \end{matrix}} & \begin{matrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{matrix} \\ \begin{matrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{matrix} & \boxed{\begin{matrix} 0 & -\frac{\mu_{1'2'}A_F}{2\hbar} \\ -\frac{\mu_{1'2'}A_F}{2\hbar} & \Delta \end{matrix}} \end{pmatrix}$$

est constitué de deux blocs diagonaux que l'on va diagonaliser simultanément en effectuant le changement de base défini par

$$\begin{pmatrix} \alpha_{\uparrow-} \\ \alpha_{\uparrow+} \\ \alpha_{\downarrow-} \\ \alpha_{\downarrow+} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \beta & \sin \beta & 0 & 0 \\ -\sin \beta & \cos \beta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos \beta & -\sin \beta \\ 0 & 0 & \sin \beta & \cos \beta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ a_{1'} \\ a_{2'} \end{pmatrix} \quad (\text{V.3})$$

avec l'angle de mélange  $\beta$  et la pulsation de Rabi <sup>b</sup> du champ fort  $\Omega_F$  exprimés comme :

$$\tan 2\beta = \frac{\Omega_F}{\Delta/2} \quad (\text{V.4})$$

$$\Omega_F = \frac{\mu_{12}A_F}{2\hbar} \quad (\text{V.5})$$

Le champ de contrôle est résonant ( $\Delta = 0$ ) sur la transition, et l'angle de mélange  $\beta = \pi/4$ . Les amplitudes  $\alpha_{\uparrow\pm}$  dans la base adiabatique sont alors simplement données par :

$$\alpha_{\uparrow\pm} = \frac{a_2 \mp a_1}{\sqrt{2}}$$

et

$$\alpha_{\downarrow\pm} = \frac{a_{1'} \pm a_{2'}}{\sqrt{2}}$$

Les états adiabatiques  $|\uparrow\downarrow\pm\rangle$  ont leur énergie  $E_{\pm}$  donnée par  $E_{\pm} = \pm|\Omega_F|$ . Les états notés  $|\uparrow\pm\rangle$  sont les états construits à partir des états de  $M_J = +1/2$  (i.e.  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ ), ceux notés  $|\downarrow\pm\rangle$  à partir des états de  $M_J = -1/2$  (i.e.  $|1'\rangle$  et  $|2'\rangle$ ). La fonction d'onde  $|\psi(t)\rangle$  dans la nouvelle base s'exprime comme :

$$|\psi(t)\rangle = \alpha_{\uparrow-}(t) |\uparrow-\rangle + \alpha_{\uparrow+}(t) |\uparrow+\rangle + \alpha_{\downarrow-}(t) |\downarrow-\rangle + \alpha_{\downarrow+}(t) |\downarrow+\rangle$$

---

<sup>b</sup> Comme  $\mu_{1'2'} = -\mu_{12}$ , la pulsation de Rabi du champ fort est changée de signe entre les deux blocs. Ceci explique les signes alternés des termes en  $\sin\beta$  dans la définition du changement de base.



et suit l'équation d'évolution  $i\hbar\partial_t |\psi(t)\rangle = H_A |\psi(t)\rangle$ , où  $H_A$  est la matrice diagonale des énergies propres des états  $|\uparrow \pm\rangle$  et  $|\downarrow \pm\rangle$  définie par :

$$H_A = \begin{pmatrix} E_- & 0 & 0 & 0 \\ 0 & E_+ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & E_- & 0 \\ 0 & 0 & 0 & E_+ \end{pmatrix} \quad (\text{V.6})$$

Comme dans le cas résonant, il n'y a pas de transition entre états adiabatiques ( $\Delta = 0 \Rightarrow \dot{\beta} = 0$ ). Chacune des populations dans les états adiabatiques reste constante et égale à la valeur définie par les conditions initiales et suit la branche d'énergie (figure V.5) correspondant à l'état considéré.

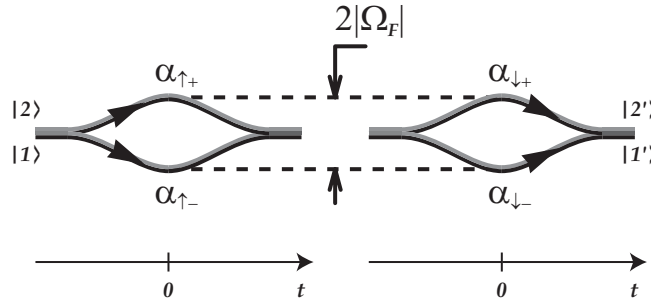


FIG. V.5 – Description du système dans la base adiabatique : Le système présente des branches d'énergie dégénérées deux à deux et séparées par le déplacement lumineux  $2|\Omega_F|$  induit par le champ fort. Pour la clarté du schéma les branches qui se rapportent respectivement aux états  $\alpha_{\uparrow\pm}$  et  $\alpha_{\downarrow\pm}$  sont décalées horizontalement. L'axe des temps reporté en bas rappelle que ces branches d'énergies sont déplacées en même temps.

Examinons donc les conditions initiales du système. Dans son état fondamental  $S_{\frac{1}{2}}$ , le système se répartit statistiquement de manière équiprobable entre les états dégénérés en énergie  $|1\rangle$  et  $|1'\rangle$ . Sur un échantillon constitué de  $N$  atomes, nous avons  $N/2$  atomes dans l'état  $M_J = -1/2$  et  $|a_1|^2 = 1$ . Les  $N/2$  atomes restants sont dans l'état  $M_J = +1/2$  avec  $|a_{1'}|^2 = 1$  (figure V.6). Nous devons donc *a priori* traiter indépendamment ces deux conditions initiales. Cependant pour des raisons de symétrie, il est possible de traiter le problème avec l'unique condition initiale qui consiste à considérer les  $N$  atomes dans un des deux états initiaux possibles, à condition de modifier l'équation de propagation du champ faible :

$$\frac{\partial}{\partial z} A_f e^{i\phi} \vec{e}_x = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\partial}{\partial z} (A_{\sigma_-} e^{i\phi} \vec{\varepsilon}_- - A_{\sigma_+} e^{i\phi} \vec{\varepsilon}_+)$$

où  $A_{\sigma_{\pm}}$  sont les projections de  $A_f \vec{e}_x$  sur  $\vec{\varepsilon}_{\pm}$ . Comme le problème est invariant par une rotation quelconque autour de l'axe de propagation, le cas particulier de la rotation de  $\pi$  échange les composantes circulaires gauche et droite selon  $\sigma_{\pm} \rightarrow \sigma_{\mp}$  sans changer les résultats physiques. L'équation de propagation s'écrit initialement

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\partial}{\partial z} (A_{\sigma_-} e^{i\phi} \vec{\varepsilon}_- - A_{\sigma_+} e^{i\phi} \vec{\varepsilon}_+) \propto [P_{\sigma_+}(\uparrow) + P_{\sigma_-}(\uparrow)]_{N/2} - [P_{\sigma_+}(\downarrow) + P_{\sigma_-}(\downarrow)]_{N/2}$$

avec  $[P_{\sigma_{\pm}}(\uparrow)]_{N/2}$  (respectivement  $[P_{\sigma_{\pm}}(\downarrow)]_{N/2}$ ) la polarisation qui rayonne sur la composante  $\sigma_{\pm}$  avec  $N/2$  atomes initialement dans l'état  $|\uparrow - \rangle$  (respectivement dans l'état  $|\downarrow - \rangle$ ). Après modification, on peut alors réécrire :

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\partial}{\partial z} A_f e^{i\phi} \propto [P_{\sigma_-}(\uparrow)]_N - [P_{\sigma_+}(\uparrow)]_N \quad (\text{V.7})$$

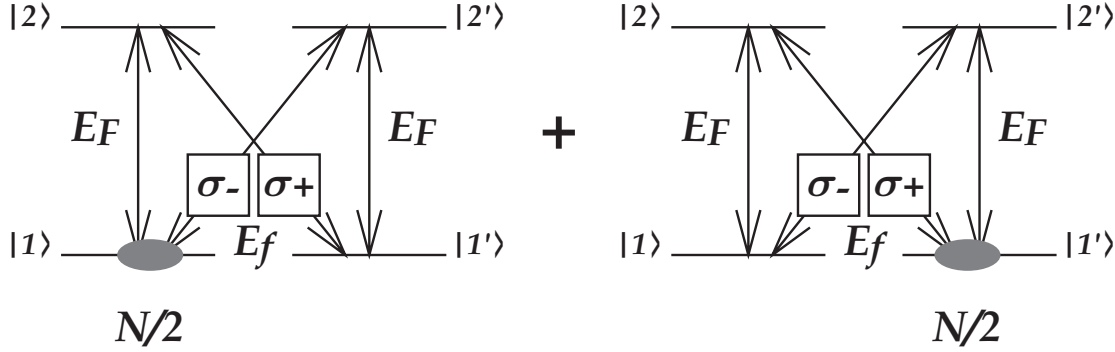


FIG. V.6 – Etat fondamental du système : Dans l'état fondamental le système est statistiquement équiréparti entre les états  $|1\rangle$  et  $|1'\rangle$ .

Afin de calculer les polarisations correspondantes, examinons l'expression du couplage dû au champ faible dans la base adiabatique. Lorsqu'on prend en compte ces termes de couplage, le Hamiltonien total est donné par  $H = H_A + V_A$ , où  $V_A$  s'écrit :

$$V_A = \begin{pmatrix} 0 & 0 & -i\hbar\Omega_f \sin \phi & \hbar\Omega_f \cos \phi \\ 0 & 0 & \hbar\Omega_f \cos \phi & -i\hbar\Omega_f \sin \phi \\ c.c. & \dots & 0 & 0 \\ \vdots & \ddots & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{V.8})$$

où

$$\Omega_f = \frac{\mu_{12'} A_f}{2\sqrt{2}\hbar} \quad (\text{V.9})$$

est la pulsation de Rabi du champ faible  $\omega$  et  $\phi$  est la phase relative entre le champ de contrôle et le champ sonde, et *c.c.* désigne le complexe conjugué. Cette expression du Hamiltonien suggère l'interprétation suivante. Dans la base adiabatique, le système total à quatre niveaux comporte deux sous-systèmes à deux niveaux fortement couplés, avec d'une part  $\mathcal{S}_1$  (qui concerne les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ ) et  $\mathcal{S}_2$  (qui concerne les états  $|1'\rangle$  et  $|2'\rangle$ ). Ce couplage n'induit pas de transition mais déplace les niveaux. Nous avons donc une description plus simple de l'action du champ fort. Le champ faible quant à lui couple les deux sous-systèmes entre eux.

---

<sup>ε</sup>Le facteur  $\sqrt{2}$  qui apparaît dans la pulsation de Rabi du champ faible provient de la décomposition sur les composantes circulaires  $\sigma_{\pm}$

Cette description éclaire particulièrement bien maintenant le rôle de la phase. En effet, nous pouvons remarquer que pour les cas particuliers  $\sin \phi = 0$  ou bien  $\cos \phi = 0$ , le problème se simplifie puisqu'il ne subsiste alors que quelques éléments de couplage. Analysons ces deux situations.

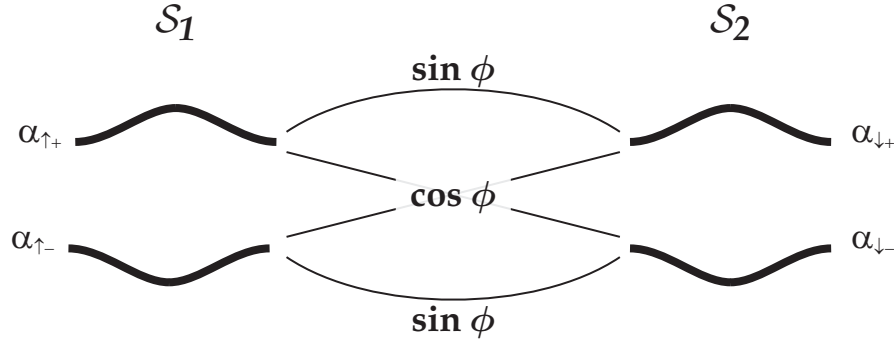


FIG. V.7 – Couplages dus au champ faible dans la base adiabatique : Les niveaux sont dégénérés quand  $T \rightarrow \pm\infty$ . Pour plus de clarté nous avons décalé verticalement les deux niveaux d'un même sous-système, et horizontalement les deux sous-systèmes l'un par rapport à l'autre.

Dans le cas où  $\phi = 0 + n\pi$ , les branches d'énergie de  $\mathcal{S}_1$  sont connectées aux branches d'énergie de  $\mathcal{S}_2$  dont les déplacements lumineux sont de signes opposés. Nous dirons que le couplage est "croisé". Dans le cas où  $\phi = \frac{\pi}{2} + n\pi$ , les branches d'énergie de  $\mathcal{S}_1$  sont connectées aux branches d'énergie de  $\mathcal{S}_2$  dont les déplacements lumineux sont de même signe. Nous dirons que le couplage est "parallèle". Cela montre une dépendance claire du couplage avec la phase relative  $\phi$  des deux impulsions qui permet de simplifier l'analyse.

$\phi = 0$	$\phi = \pi/2$
$E_{\pm}(\mathcal{S}_1 \uparrow) \leftrightarrow E_{\mp}(\mathcal{S}_2 \downarrow)$	$E_{\pm}(\mathcal{S}_1 \uparrow) \leftrightarrow E_{\pm}(\mathcal{S}_2 \downarrow)$

TAB. V.1 – Couplages entre les branches adiabatiques de  $\mathcal{S}_1$  et de  $\mathcal{S}_2$  - Cas  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$

En représentation dipolaire, (cf chapitre IV) chacun des systèmes à deux niveaux présente des triplets de fréquences d'émission (analogue au triplet de Mollow). La figure V.8 représente ces différentes énergies ainsi que les couplages induits par le champ faible à ces fréquences. En couplage croisé  $\phi = 0$  (partie gauche figure V.8), lorsque le champ fort induit des déplacements lumineux importants, le champ faible n'interagit pratiquement pas avec le système. Seuls les chemins non résonants  $JK'$  (respectivement  $J'K$ ) ou  $IL'$  (respectivement  $I'L$ ), sont excités par le champ faible. A l'opposé, en couplage parallèle  $\phi = \pi/2$  (partie droite figure V.8), les chemins résonants  $JL'$  (respectivement  $J'L$ ) ou  $IK'$  (respectivement  $I'K$ ), sont excités par le champ faible. Celui-ci est alors toujours résonant avec le système : on s'attend dans ce cas à des modifications très importantes aussi bien sur l'énergie, que sur la forme temporelle ou le spectre de l'impulsion transmise.

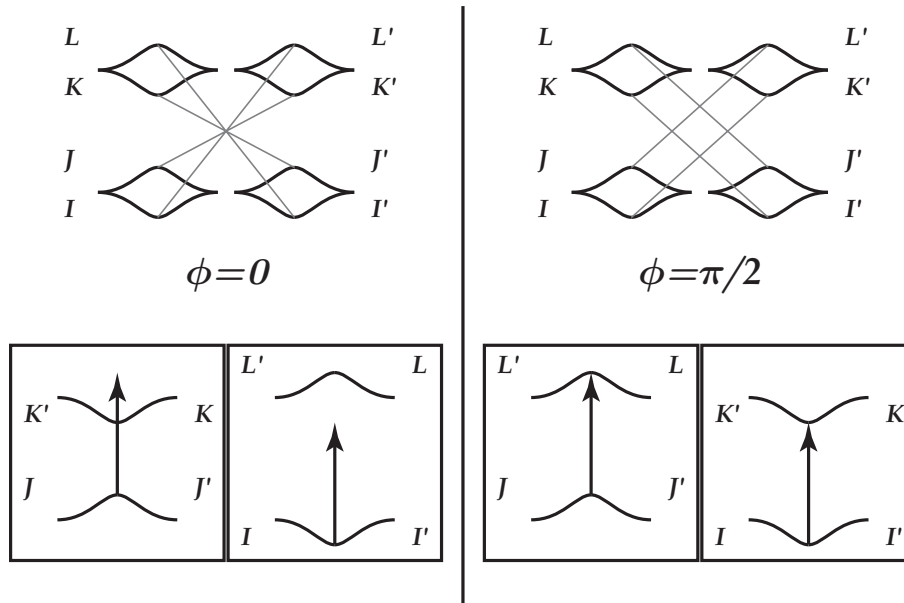


FIG. V.8 – Représentation dipolaire : Les états de chaque triplet de fréquences sont libellés  $I, J, K$ , et  $L$  (par énergies croissantes) pour les états correspondants à  $|\pm \uparrow\rangle$ . On utilise les lettres primées pour les niveaux de triplet correspondants aux états  $|\pm \downarrow\rangle$ . Les quatre diagrammes encadrés correspondent aux différentes situations de couplages entre les branches d'énergie. La flèche verticale correspond à l'énergie associée à la pulsation centrale de l'impulsion faible.

Les deux situations que nous venons d'analyser correspondent en fait au découplage entre la partie réelle et imaginaire du champ  $A_f$ . Ici nous ne traiterons que le cas d'une phase relative  $\phi$  constante dans le temps, mais nous pourrions tout à fait considérer le cas général d'une phase dépendante du temps (e.g. impulsion à dérive de fréquence) avec la même approche.

La description dans la base adiabatique que nous venons de développer nous permet de simplifier l'analyse que nous allons donner des résultats théoriques et expérimentaux en fonction des paramètres des lasers, en particulier en fonction de phase relative  $\phi$  et l'énergie du champ fort.

## V.2 Dispositif expérimental

Avant de discuter les résultats théoriques et expérimentaux, nous allons décrire les différentes étapes du montage expérimental que nous avons réalisé pour mettre en évidence les oscillations (période, dépendance avec l'énergie et le délai de l'impulsion forte) sur l'énergie de l'impulsion faible transmise, ainsi que les conséquences sur la forme temporelle des impulsions. Il y a un certain nombre de points cruciaux et délicats liés soit directement à la physique du problème (polarisations "bien définies", grande dynamique entre l'intensité du champ fort et l'intensité du champ faible), soit aux moyens expérimentaux dont nous disposons (pas d'asservissement interférométrique du délai entre les impulsions).

Le champ fort pouvant être très intense, on diminue au maximum le nombre d'éléments optiques traversés par celui-ci. En particulier on préférera tourner la polarisation du champ faible avec une lame d'onde plutôt que celle du champ fort.

Afin d'obtenir une polarisation du champ fort "bien définie", nous procédons de la manière suivante. Premièrement, nous disposons un cube polariseur ( $CP1$ ) orienté de sorte à maximiser le signal transmis. Ainsi, le faisceau incident, qui a initialement une ellipticité faible mais inconnue et une orientation de grand axe sensiblement horizontale, se trouve polarisé linéairement sur la direction du grand axe de l'ellipse précédente. Le faisceau est ensuite séparé par une lame (4%) pour produire l'impulsion sonde à partir de l'impulsion intense. Poursuivons la description du trajet optique du champ intense. Un second polariseur ( $CP2$ ) est disposé sur le trajet de l'impulsion intense et orienté de manière à maximiser le signal transmis (idéalement l'axe de ce polariseur est parallèle au précédent). Le faisceau traverse la cellule à gaz. Après la cellule, un troisième cube polariseur ( $CP3$ ) est orienté pour obtenir une extinction maximale du signal transmis. L'axe de  $CP3$  est perpendiculaire à  $CP1$  et  $CP2$ . L'extinction relative mesurée de  $CP3$  est meilleure que  $10^{-4}$ .

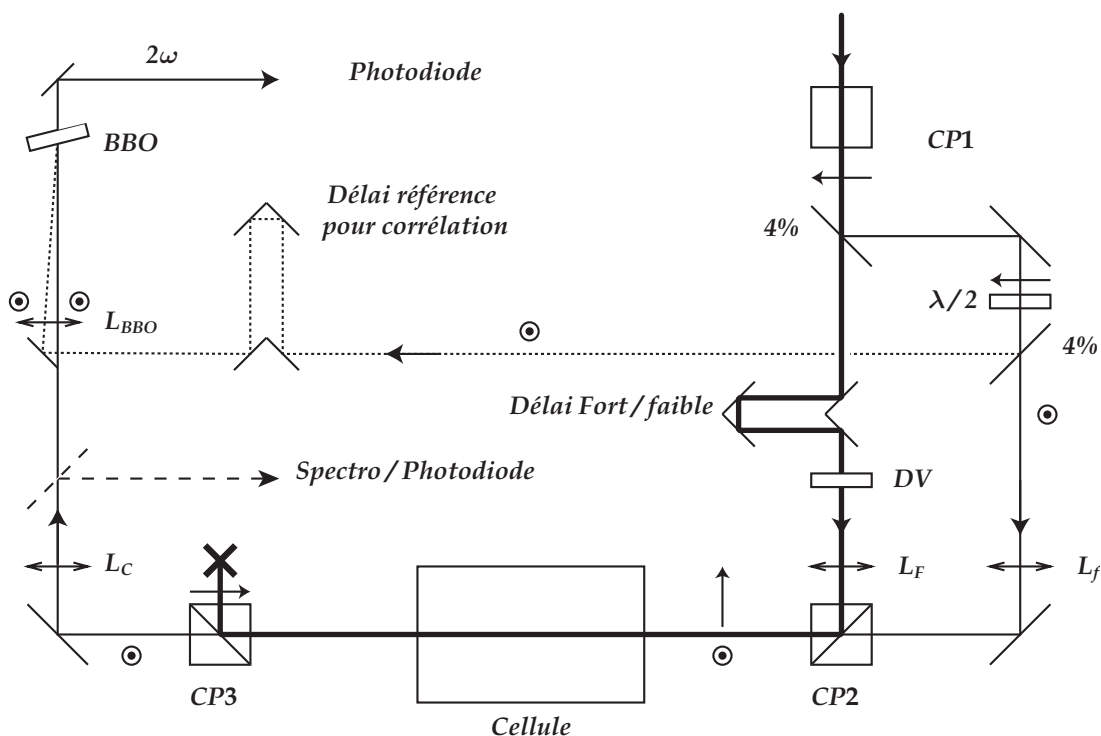


FIG. V.9 – Montage expérimental : Le faisceau laser issu du CPA est utilisé pour générer l'impulsion intense, l'impulsion faible et l'impulsion de référence. Un filtre gris de densité optique variable ( $DV$ ) permet de modifier l'intensité du champ fort. Après traversée de la cellule à vapeur, les deux impulsions polarisées orthogonalement sont séparées par un cube polariseur. Un miroir basculant permet soit de mesurer l'énergie et/ou le spectre de l'impulsion faible, ou bien d'acquérir le profil temporel de l'impulsion. L'acquisition du profil temporel est obtenue par corrélation d'intensité par somme de fréquence dans un cristal doubleur de BBO entre l'impulsion faible et l'impulsion de référence.

Considérons maintenant le trajet optique de l'impulsion sonde. Après la lame séparatrice, une lame d'onde  $\lambda/2$  tourne la polarisation de  $90^\circ$  par rapport au faisceau incident. Le cube  $CP2$  (habituellement utilisé pour séparer un faisceau en composantes de polarisations orthogonales) est ici utilisé pour recombiner spatialement le faisceau faible et le faisceau intense qui sont polarisés orthogonalement. La lame d'onde est orientée de sorte à maximiser le signal après traversée de  $CP2$  et  $CP3$ .

Les deux impulsions sont recombinées et superposées spatialement au niveau de  $CP2$ . Le champ fort subit une réflexion totale sur l'interface du polariseur et le champ faible traverse cette interface. Afin d'éviter toute "moyenne de configuration", on se place dans une situation où le faisceau faible est plus petit que le faisceau fort dont la longueur de Rayleigh est grande en comparaison de la longueur du milieu. Pour cela on utilise un faisceau faible tel que  $w_f \approx 400 \mu\text{m}$  et une taille de faisceau fort de  $w_F \approx 1,2 \text{ mm}$  (obtenus avec un choix approprié des lentilles  $L_F$  et  $L_f$ ). Après analyse par  $CP3$ , l'impulsion faible est recollimatée par la lentille  $L_C$ . On dirige ensuite le faisceau soit vers une photodiode ou un spectromètre, soit vers le cristal doubleur de BBO pour mesurer les profils temporels par somme de fréquence avec l'impulsion référence.

REMARQUE : Analyse à grand contraste

Une des principales difficultés de cette expérience vient de la grande dynamique entre le champ fort de plusieurs dizaines à quelques centaines de microjoules et le champ faible de quelques centaines de nanojoules. Ainsi lors de la séparation effectuée au niveau du polariseur d'analyse  $CP3$ , il est important d'avoir une coupure sur le champ fort meilleure que  $10^{-4}$  en énergie, afin qu'un éventuel résidu provenant du champ fort soit détecté à un niveau du même ordre voire inférieur au niveau de bruit de fond.

Par ailleurs, la polarisation du champ fort doit être particulièrement bien définie et strictement orthogonale au champ faible, afin qu'aucun résidu du champ fort n'interagisse sur la même transition que le champ faible. Si ces conditions ne sont pas strictement satisfaites (par exemple à très haute intensité du champ fort), une interférence optique entre le champ faible et le résidu du champ fort, apparaît sur le signal transmis. On peut malgré tout filtrer numériquement cette composante faible qui apparaît à une fréquence égale à la moitié de celles des oscillations que nous observons. On peut alors isoler sans difficultés le signal qui nous intéresse.

### V.2.1 Détermination de la variation de phase relative entre le champ fort et le champ faible

Afin de déterminer la variation de phase relative entre le champ fort et le champ faible, on prélève à l'aide d'une lame de verre une fraction des deux faisceaux juste à l'entrée du four. On utilise un prisme polariseur  $CP4$  pour séparer les deux faisceaux qui sont polarisés orthogonalement. Ce prisme constitue la séparatrice d'un interféromètre de Michelson dont un des bras sert à atténuer le champ fort et à ajuster son délai par rapport à l'impulsion faible. Les deux bras sont recombinés au niveau d'un miroir semi réfléchissant et envoyés dans un polariseur orienté à  $45^\circ$  des axes de polarisation du champ fort et du champ faible, puis analysés dans un spectromètre. On ajuste le délai de l'interféromètre et l'amplitude du

champ fort de sorte à obtenir un réseau de franges bien contrastées comptant une dizaine de franges visibles dans l'enveloppe du spectre. Parallèlement à cela, on prélève une partie du faisceau avant le polariseur d'analyse CP3. Le faisceau traverse un film polariseur (FP) orienté de sorte à équilibrer les signaux du champ faible et du champ fort dont l'intensité est diminuée au préalable afin de ne pas détériorer le film polariseur. On ajuste finement le délai entre les deux impulsions pour obtenir une frange temporelle brillante sur le signal détecté avec une photodiode infrarouge. On procède alors également à l'ajustement fin du délai de l'interféromètre de sorte à ce qu'une des franges spectrales brillantes coïncide avec la longueur d'onde atomique. Dans ces conditions, la différence de marche mesurée entre les impulsions au niveau de la photodiode, et la différence de marche obtenue au spectromètre ne diffèrent que d'un nombre entier de longueur d'onde centrale du laser : lorsque l'on change le délai entre les deux impulsions, on contrôle alors au spectromètre la variation de la phase relative entre ces deux impulsions.

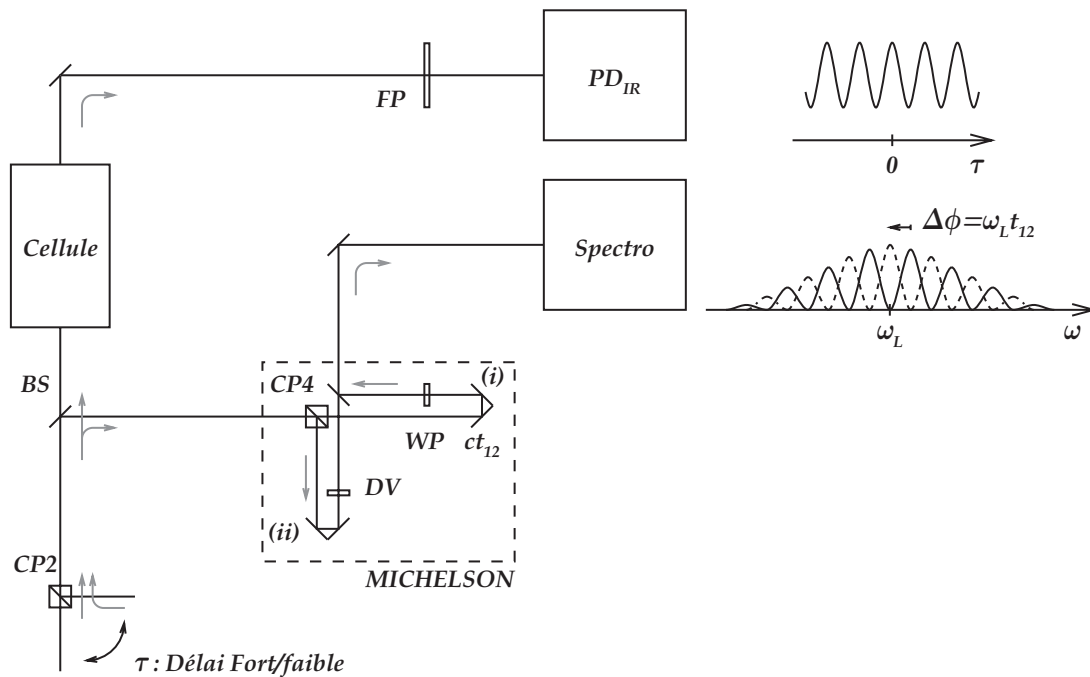


FIG. V.10 – Détermination de la phase relative par franges spectrales : Les deux impulsions polarisées orthogonalement sont recombinaées spatialement par un cube polariseur (CP2). Une faible fraction du faisceau est envoyée dans un interféromètre de Michelson ; la fraction principale traverse la cellule à gaz au niveau du four. Après la cellule, on utilise un film polariseur (FP) orienté de sorte à équilibrer les intensités respectives du signal "fort" et "faible" mesuré par une photodiode infrarouge ( $PD_{IR}$ ). Le délai  $t_{12}$  entre les deux impulsions est ajusté sur une frange brillante au voisinage du délai nul. Parallèlement les deux impulsions sont séparées par un cube polariseur (CP4) : l'impulsion faible se propage dans le bras (i) de l'interféromètre, où l'on a disposé une lame d'onde (WP) afin de tourner l'axe polarisation de  $90^\circ$ . Le champ fort est atténué dans le bras (ii) à l'aide d'une densité variable (DV). Les deux impulsions sont recombinaées puis analysées par un spectromètre. Les franges spectrales sont ajustées en variant le délai  $c\tau$  : on règle l'interféromètre de sorte à avoir une frange spectrale brillante à la pulsation atomique  $\omega_{at} \approx \omega_L$ .

## V.3 Résultats théoriques et expérimentaux

### V.3.1 Energie de l'impulsion transmise : variation avec la phase $\phi$

La figure V.11 représente l'évolution de l'énergie de l'impulsion faible transmise en fonction de la phase relative  $\phi$  entre les deux impulsions. L'axe horizontal représente le délai entre les deux impulsions. Lorsqu'on varie le délai  $\tau$  entre les deux impulsions, au voisinage de  $\tau = 0$ , on change la phase relative  $\phi = \omega_L \tau$  sans modifier de manière importante le recouvrement temporel des impulsions. L'énergie présente une oscillation de période 1,32 fs (moyenne calculée sur une dizaine d'oscillations) soit la moitié de la période optique d'une impulsion laser centrée à 794,76 nm. L'énergie transmise  $E_f(L)$  oscille entre sa valeur à l'entrée du milieu  $E_f(0)$  et une valeur plus élevée  $E_f^{\max}(L)$  (dans ce cas il y a un gain) qui dépend de l'énergie de l'impulsion de contrôle et de l'épaisseur optique  $\alpha_0 L$  (ou  $e_{\text{disp}}$ ) du milieu.

NB : Il est remarquable d'observer des oscillations alors que les deux champs sont polarisés orthogonalement et n'interfèrent donc pas optiquement. Notons par ailleurs que la période de 1,32 fs (égale à la moitié d'une période optique pour la longueur d'onde considérée) n'est également pas compatible avec des interférences optiques. En réalité, comme nous l'avons dit en début de ce chapitre, ce sont effectivement les interférences entre un chemin d'absorption et un chemin d'émission du champ faible qui sont responsables des oscillations à  $2\phi = 2\omega_L \tau$ .

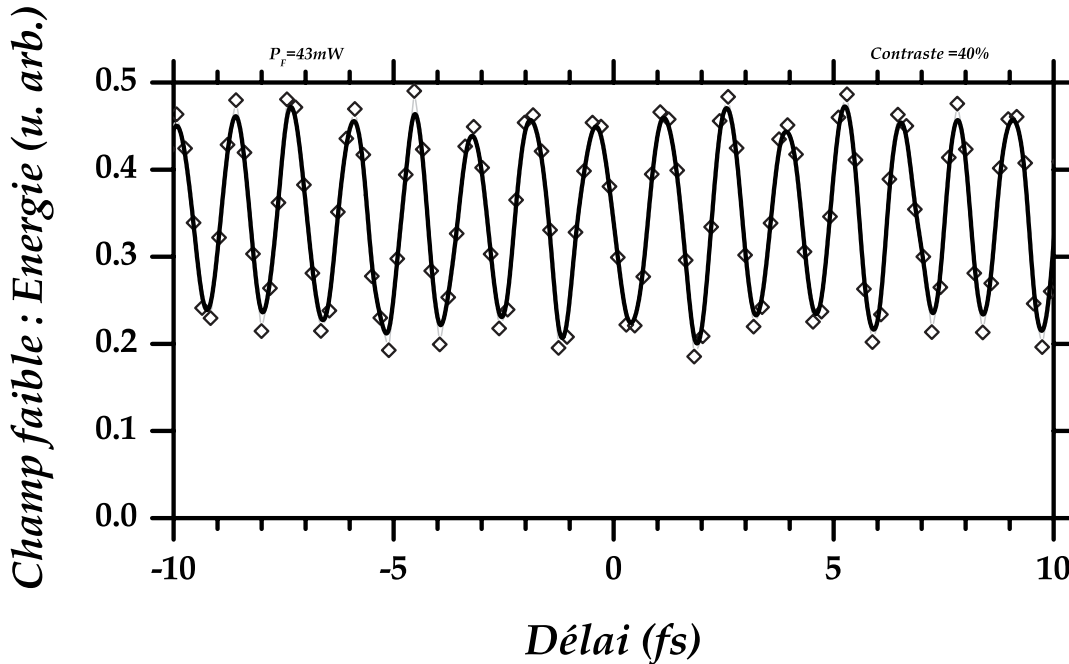


FIG. V.11 – Energie du champ faible - Evolution avec le délai (9,5 nm FWHM à 794,76 nm,  $E_f = 140$  nJ) : La période des oscillations est de 1,32 fs qui correspond à un déphasage de  $\phi = \pi$ .



### V.3.2 Energie de l'impulsion transmise : évolution avec l'intensité du champ fort

Nous nous plaçons maintenant dans le cas où le recouvrement entre les impulsions est maximal pour  $\tau = 0$ . Nous allons étudier l'énergie de l'impulsion transmise en fonction de l'énergie du champ de contrôle pour les cas  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$  (obtenus en changeant légèrement le délai au voisinage de  $\tau = 0$ ). Nous verrons ultérieurement le rôle du recouvrement temporel.

La figure V.12 illustre la variation d'énergie de l'impulsion faible transmise en fonction de l'énergie de l'impulsion incidente pour les cas  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ . Ces résultats sont obtenus autour de  $\tau = 0$  en mesurant la valeur minimale et maximale de l'énergie transmise. Quand  $\phi = 0$ , l'énergie transmise présente un plateau constant qui est sensiblement indépendant de l'énergie  $E_F$  du champ de contrôle. Pour  $\phi = \pi/2$ , l'énergie croît tout d'abord au fur et à mesure que l'énergie  $E_F$  augmente, jusqu'à atteindre un maximum autour de  $E_F = 50 \mu\text{J}$ . A partir du waist mesuré du champ fort ( $w_F \approx 1,2 \text{ mm}$ ), nous pouvons estimer une valeur de l'angle de Rabi correspondant à  $\theta_F = 1,2\pi$  pour cette énergie. Suivant les paramètres expérimentaux nous avons mesuré des amplifications comprises entre un facteur 3 et un facteur 10 (ici égal à 5). L'énergie décroît en suite quand  $E_F$  continue d'augmenter et atteint un minimum situé entre 150 et 250  $\mu\text{J}$ . Nous pouvons observer une légère remontée du signal, si on augmente encore  $E_F$  jusqu'à une valeur maximale de 350  $\mu\text{J}$  que nous nous sommes imposée pour ne pas atteindre la limite d'énergie admissible par les éléments optiques du montage (apparition d'un continuum de lumière blanche à 500  $\mu\text{J}$  dans une lame de verre épaisse de 5 mm pour un waist de 1,7 mm et taux d'ionisation important  $\approx 5\%$ , cf annexe A).

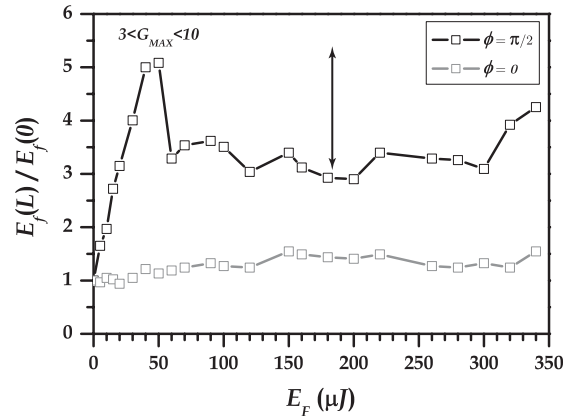


FIG. V.12 – Energie transmise - Evolution en fonction de l'énergie du champ de contrôle pour  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$  ( $E_f = 140 \text{ nJ}$ ,  $T = 140^\circ\text{C}$ )

Nous pouvons interpréter ces résultats à partir de la simulation présentée sur la figure V.13. Nous avons vu dans la partie V.1.3 qu'il existe principalement deux situations  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$  (les autres cas intermédiaires sont évidemment possibles) pour lesquels le déplacement lumineux joue un rôle différent (cf figure V.7). Avant toute chose, nous rappelons que l'absorption totale (intégrée sur tout le spectre) d'une impulsion large bande

est négligeable, du fait de sa grande largeur par rapport à celle du profil d'absorption (de l'ordre de la largeur Doppler). En conséquence et dans la majorité des cas, l'énergie de l'impulsion faible ne peut être qu'amplifiée <sup>d</sup> après propagation dans le milieu piloté par le champ fort.

En couplages parallèles  $\phi = \pi/2$  (courbe noire), l'interaction du champ faible avec le système est toujours résonante. Lorsque l'inversion de population est maximale pour  $E_F = 50\mu\text{J}$  ( $\theta_F = \pi$ ), on s'attend à des modifications importantes des caractéristiques de l'impulsion faible. Ici pour  $E_F = 50\mu\text{J}$ , on observe une amplification de l'énergie par un facteur 4. Autour de  $\theta_F = 2\pi$  (entre 150 et 200  $\mu\text{J}$ ), le système retourne dans l'état fondamental et l'énergie de l'impulsion faible ne ressent qu'un gain net négligeable. Lorsque l'énergie continue d'augmenter et se rapproche de  $\theta_F = 3\pi$ , le système effectue - dans la base stationnaire - un nouveau cycle de Rabi (en première approximation). L'impulsion faible présente alors à nouveau un gain.

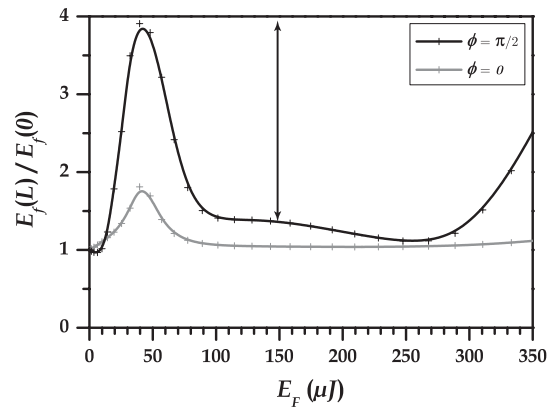


FIG. V.13 – Energie transmise - Evolution en fonction de l'énergie du champ de contrôle pour  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$  (Simulation 9,5 nm FWHM à 794,76 nm,  $\alpha_0 L = 2500$ ,  $\theta_f = 0, 3\pi$ ,  $\phi_0'' = 1500$  fs<sup>2</sup>)

Pour les couplages croisés  $\phi = 0$  (courbe grise), les déplacements lumineux importants des niveaux portent le champ faible hors résonance qui n'interagit alors pratiquement pas au cours de la propagation. On peut s'attendre à une modification peu importante des propriétés de l'impulsion faible. Cependant pour  $E_F = 50\mu\text{J}$ , nous sommes donc dans une situation où l'inversion de population sur la transition  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$  est maximale. Le déplacement lumineux induit, à cette même énergie, n'est pas suffisant pour que le champ faible soit suffisamment non résonant : nous sommes dans une situation intermédiaire et le champ faible présente, malgré les déplacements lumineux, un gain modéré ( $\simeq \times 1,75$ ) du fait de l'inversion de population.

Les résultats théoriques et expérimentaux montrent sensiblement les mêmes caractéristiques. Notons l'accord particulièrement satisfaisant concernant l'existence d'un plateau quasiment indépendant de l'énergie dans le cas  $\phi = 0$ . Par ailleurs, la courbe présente bien

<sup>d</sup> En régime d'interaction paramétrique, l'échange d'énergie se fait surtout du champ fort vers le champ faible. Il y a cependant quelques situations (par exemple quand les oscillations n'interviennent qu'au troisième ordre) où l'échange s'effectue dans l'autre sens.

un maximum suivi d'une décroissance pour  $\phi = \pi/2$ .

Malgré cet accord raisonnable, nous pouvons cependant noter quelques différences. Tout d'abord, le pic autour de  $50 \mu\text{J}$  est absent sur la courbe correspondant au cas  $\phi = 0$ . Notons également la différence observée sur le ratio entre le pic à  $50 \mu\text{J}$  et le minimum dans l'intervalle d'énergies comprises entre  $150$  et  $200 \mu\text{J}$  (représenté par la flèche double sur les figures V.13 et V.12). Comme nous ne disposons pas à l'heure actuelle de procédure d'ajustement par moindres carrés<sup>Ⓔ</sup>, la simulation n'est pas obtenue pour des conditions exactement identiques à celles de l'expérience. Ceci peut expliquer les différences constatées.

### V.3.2.1 Effet du spin orbite

Les différents pics présents pour  $\phi = \pi/2$  et dans une moindre mesure pour  $\phi = 0$ , correspondent aux oscillations de Rabi induites par le champ fort sur le système  $|1\rangle - |2\rangle$ . Nous allons maintenant considérer ces oscillations de Rabi pour  $\phi = \pi/2$  et examiner la valeur du gain en tenant compte de l'influence du couplage spin-orbite avec le niveau  $5p \ ^2P_{3/2}$ . Comme expérimentalement nous n'avons pas accès à des énergies suffisantes pour observer cette deuxième oscillation en intégralité, nous ne présentons ici que les résultats de simulations numériques. La figure V.14 représente en noir l'énergie transmise de l'impulsion faible en fonction de l'angle de Rabi de l'impulsion de contrôle. Ce résultat est obtenu en tenant compte de tous les effets du système (propagation du champ fort, spin-orbite, etc). Lorsqu'on déconnecte artificiellement le niveau  $5p \ ^2P_{3/2}$ , le gain (et la population comme on va le voir plus loin) atteint la même valeur pour tous les multiples impairs de  $\pi$ . Par contre, si on prend en compte ce niveau, nous remarquons d'une part un déphasage par rapport aux valeurs attendues pour des oscillations de Rabi, et d'autre part une chute brutale de la valeur des pics au fur et à mesure que  $\theta_F$  augmente.

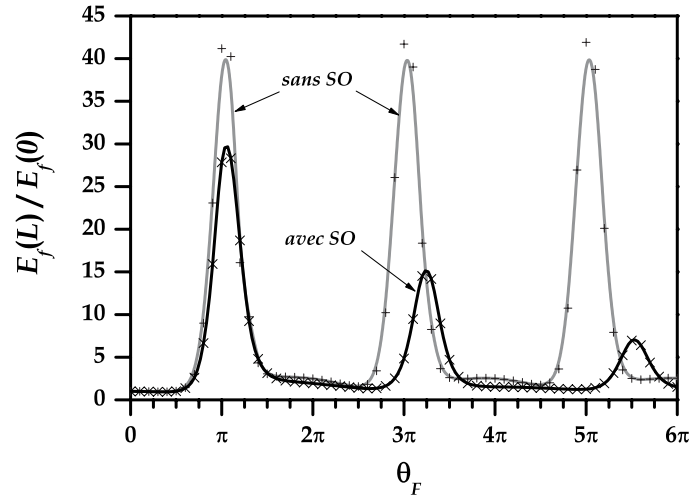


FIG. V.14 – Energie de l'impulsion faible - Evolution avec  $\theta_F$  et effet du spin-orbite (Simulation  $9,5 \text{ nm}$  FWHM à  $794,76 \text{ nm}$ ,  $\alpha_0 L = 4500$ ,  $\theta_f = 0, 1\pi$ )

<sup>Ⓔ</sup> Cette procédure - simple dans le principe - est en réalité assez difficile à mettre en œuvre à cause du temps de calcul important qu'elle nécessite et du nombre important de paramètres ajustables.

Cet effet peut également s'observer sur la valeur  $|a_{2'}(\infty)|^2$  de la population transférée asymptotiquement dans l'état  $|2'\rangle$  par le champ fort. C'est cette population qui est principalement responsable du gain <sup>‡</sup> observé sur l'impulsion faible transmise. La figure V.15 représente cette population calculée avec et sans spin-orbite. En gris sont représentées les oscillations de Rabi sur la population sans SO à 794,76 nm : on a un contraste maximal égal à 1. Lorsqu'on ajoute l'effet du spin-orbite, les oscillations présentent également un décalage et une atténuation quand  $\theta_F$  augmente.

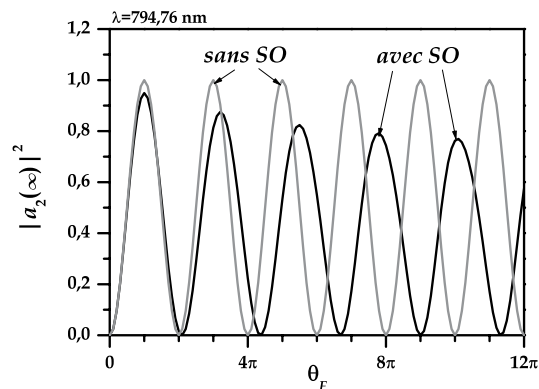


FIG. V.15 – Population  $|a_2(\infty)|^2$  - Evolution avec  $\theta_F$  et effet du spin-orbite (Simulation 9,5 nm FWHM à 794,76 nm,  $\theta_f = 0, 1\pi$ )

Notons que nous avons représenté les résultats en fonction de l'angle de Rabi  $\theta_F$  défini sur la transition  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$  et proportionnel au moment dipolaire de cette transition. Le décalage observé résulte alors du moment dipolaire effectif total qui n'est pas le même si on prend en compte le niveau  $5p \ ^2P_{3/2}$  et change l'intensité du couplage ressenti depuis l'état fondamental. L'angle de Rabi  $\theta_F$  est alors changé par rapport à l'angle de Rabi effectif dans le rapport  $\mu_{12}/\mu_B$  où  $\mu_B = \sqrt{\mu_{12}^2 + \mu_{13}^2}$ . De manière équivalente, cela revient à dire que quand il y a deux ou plusieurs niveaux proches dans le spectre de l'impulsion excitatrice, on ne peut pas définir une impulsion  $\pi$  qui réalise une inversion de population totale vis-a-vis d'un de ces niveaux. Ceci explique la baisse observée sur le premier pic.

L'atténuation des autres pics qui se produit quand  $\theta_F$  augmente et que l'on retrouve sur le gain de l'impulsion transmise, est une conséquence du phénomène de blocage de paquet d'onde [96]. Nous pouvons visualiser plus clairement cet effet en nous plaçant dans la base des états brillant  $|B\rangle$  (respectivement  $|B'\rangle$ ) et noir  $|N\rangle$  (respectivement  $|N'\rangle$ ) [97], définis comme :

$$|B\rangle = \frac{\mu_{12} |2\rangle + \mu_{13} |3\rangle}{\sqrt{\mu_{12}^2 + \mu_{13}^2}} \quad |N\rangle = \frac{\mu_{13} |2\rangle - \mu_{12} |3\rangle}{\sqrt{\mu_{12}^2 + \mu_{13}^2}}$$

et

$$|B'\rangle = \frac{\mu_{1'2'} |2'\rangle + \mu_{1'3'} |3'\rangle}{\sqrt{\mu_{1'2'}^2 + \mu_{1'3'}^2}} \quad |N'\rangle = \frac{\mu_{1'3'} |2'\rangle - \mu_{1'2'} |3'\rangle}{\sqrt{\mu_{1'2'}^2 + \mu_{1'3'}^2}}$$

<sup>‡</sup> Le gain observé est le gain net, c'est-à-dire le gain moyen intégré sur les cycles de Rabi. Cette "valeur moyenne" correspond au fait que l'impulsion forte et l'impulsion faible ont la même durée et les cycles de Rabi se produisent à l'intérieur de l'enveloppe de l'impulsion faible.

Les nouveaux états sont représentés sur la figure V.16a. Les états  $|B\rangle$  et  $|N\rangle$  sont couplés par  $V_{BN}$ , qui fait osciller  $\mathfrak{z}$  entre ces deux états, la population transférée depuis l'état fondamental. Sous l'action du champ, l'état  $|B\rangle$  est déplacé (figure V.16b). Lorsque le déplacement induit est très supérieur à  $V_{BN}$ , l'oscillation de  $|B\rangle$  vers  $|N\rangle$  est frustrée : c'est le blocage de paquet d'onde. Le phénomène est également transposable aux états  $|B'\rangle$  et  $|N'\rangle$ . Ainsi, quand on tient compte de l'effet du couplage spin orbite, les déplacements lumineux se manifestent également sur le gain de l'impulsion faible transmise alors qu'ils ne jouaient aucun rôle en couplage parallèle  $\phi = \pi/2$  dans le système à quatre niveaux sans spin-orbite. Puisque le champ faible connecte par exemple l'état  $|N\rangle$  et l'état  $|1'\rangle$ , sous l'action simultanée du blocage de paquet d'onde (qui diminue la population transférée dans l'état  $|N\rangle$ ) et du déplacement lumineux présent sur l'état  $|1'\rangle$  (qui place le champ faible hors résonance), le gain ressenti par l'impulsion faible ne peut que diminuer quand  $\theta_F$  augmente.

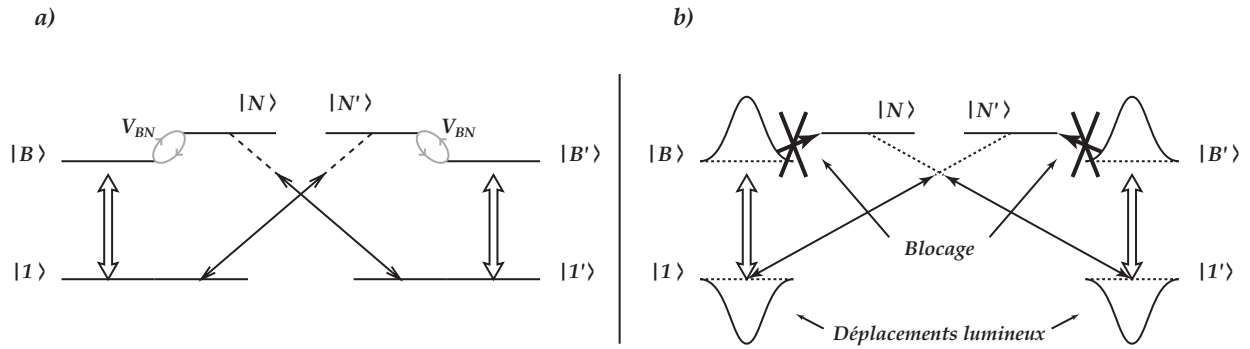


FIG. V.16 – Base des états brillant et noir - Blocage du paquet d'onde : En a) base des états brillant et noir sans action du champ fort. En b) base des états brillant et noir sous l'action du champ fort et phénomène de blocage du paquet d'onde sous l'influence des déplacements lumineux.

### V.3.2.2 Rôle du recouvrement temporel des impulsions

La figure V.17 représente l'évolution de l'énergie de l'impulsion faible en fonction du retard entre cette impulsion et l'impulsion de contrôle pour différentes puissances du faisceau intense. Puisque le délai varie, les oscillations à  $2\phi = 2\omega_L\tau$  que nous avons mentionnées précédemment apparaissent sur le signal mais à l'échelle de la figure elles sont très serrées (1,32 fs) et ne sont donc pas résolues. Lorsque le délai est important l'énergie tend vers sa valeur initiale  $E_f(0)$  obtenue en l'absence de champ fort. A mesure que les impulsions se recouvrent temporellement, les oscillations apparaissent. Nous remarquons d'une part la présence d'un lobe central dont le minimum coïncide pratiquement avec  $E_f(0)$ , et d'autre part que l'enveloppe des oscillations n'est pas symétrique par rapport au délai  $\tau = 0$ .

$\mathfrak{z}$  L'oscillation se fait à la période  $T_{SO}$  de précession du spin

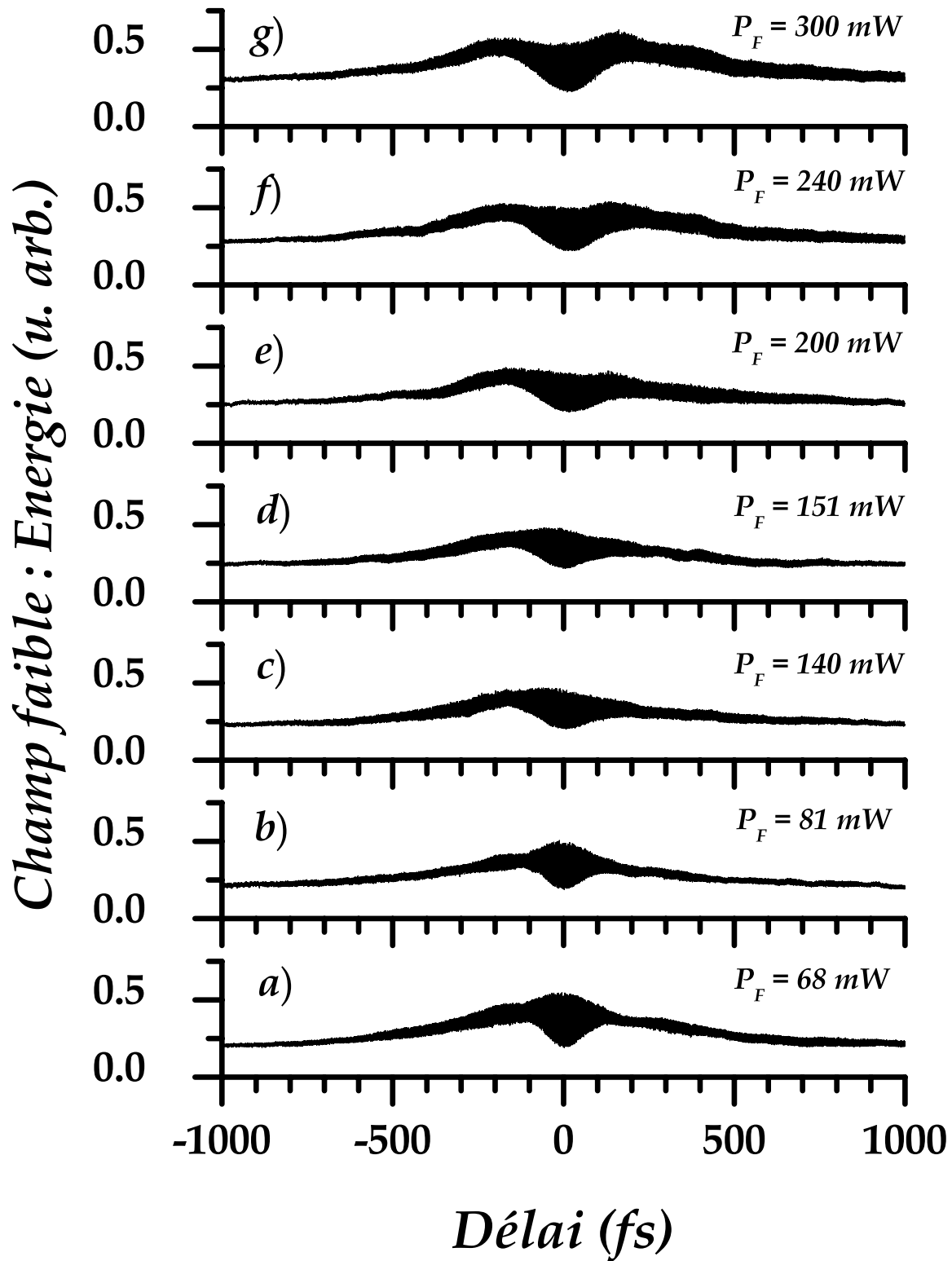


FIG. V.17 – Energie du champ faible - Effet du recouvrement temporel

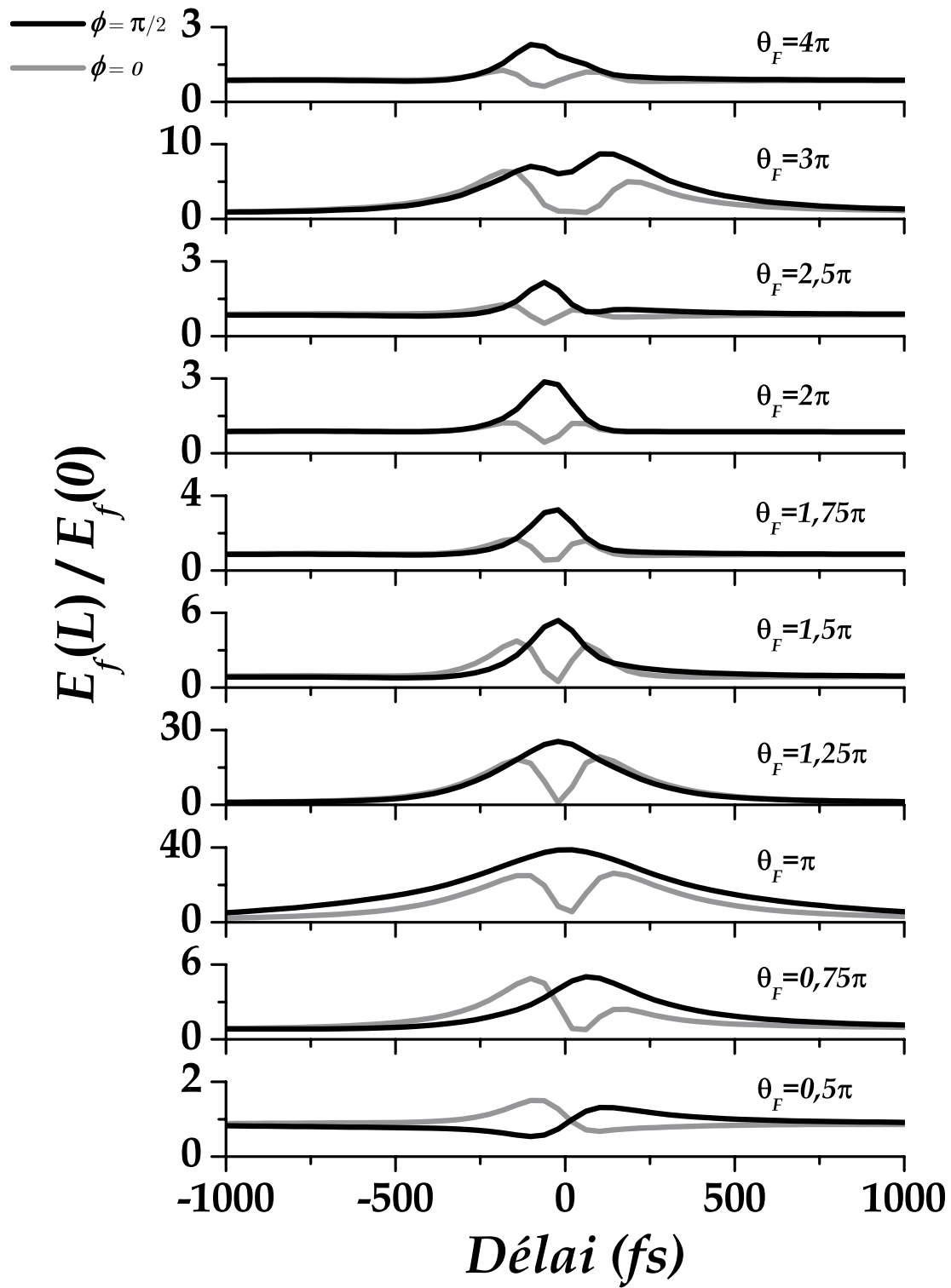


FIG. V.18 – Energie du champ faible - Effet du recouvrement temporel (Simulation 9,5 nm FWHM à 794,76 nm,  $\alpha_0 L = 7500$ ,  $\theta_f = 0, 1\pi$ )

La figure V.18 représente les enveloppes (pour  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ ) des oscillations calculées numériquement en fonction du délai entre les impulsions pour plusieurs valeurs croissantes (de bas en haut) des angles de Rabi  $\theta_F$  du champ fort. Ces résultats ne sont pas obtenus pour des conditions identiques à celle de l'expérience, mais les courbes présentent cependant le même comportement qualitatif. Notons que les échelles verticales des courbes simulées sont parfois très différentes d'une courbe à l'autre.

Nous remarquons les tendances suivantes lorsque la valeur de  $\theta_F$  est suffisamment importante (*i.e.* nous excluons de cette description le cas  $\theta_F = 0, 5\pi$ ) : pour  $\phi = \pi/2$ , l'énergie de l'impulsion tend à être maximale lorsque les deux impulsions se recouvrent. Quand  $\phi = 0$ , l'énergie présente un minimum au voisinage de  $\tau = 0$ . De part et d'autre de ce minimum, il existe deux maximums locaux dont les hauteurs ne sont pas identiques. Lorsque le délai entre les deux impulsions devient important, les deux situations  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ , tendent asymptotiquement vers la même valeur égale à l'énergie  $E_f(0)$  de l'impulsion.

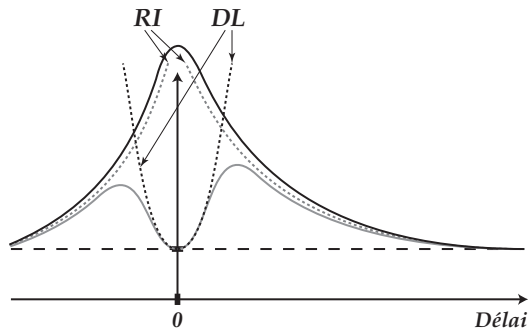


FIG. V.19 – Rôle du recouvrement - Comportement qualitatif : En noir  $\phi = \pi/2$ , en gris  $\phi = 0$ . Pour  $\phi = 0$ , l'allure de la courbe résulte de la compétition entre d'une part le recouvrement des impulsions (RI) qui tend à maximiser les échanges d'énergie et d'autre part les déplacements lumineux (DL) qui tendent à minimiser l'interaction de l'impulsion faible avec le système. Asymptotiquement l'énergie transmise est égale à l'énergie incidente.

Pour comprendre ce comportement, considérons le cas  $\phi = 0$  : ces courbes présentent un minimum pour  $\tau = 0$ . Quand le délai entre les impulsions est important ( $|\tau| > 500$  fs), seule une faible fraction d'énergie négligeable (concentrée sur la largeur d'absorption qui est négligeable devant la largeur spectrale du laser) peut être échangée entre ces impulsions. L'impulsion faible conserve son énergie  $E_f(0)$  obtenue en l'absence de champ de contrôle. Lorsque les impulsions se recouvrent parfaitement pour  $\tau = 0$ , les déplacements lumineux importants placent le champ faible hors résonance. L'énergie de l'impulsion n'est alors pas affectée et conserve également, comme dans le cas précédent, sa valeur  $E_f(0)$ . Entre ces deux cas extrêmes ( $0 < |\tau| \leq 500$  fs), il y a une compétition entre d'une part les déplacements lumineux qui tendent à diminuer le gain de l'impulsion faible et sont moins importants pour  $\tau \neq 0$ , et d'autre part le recouvrement temporel des impulsions qui est encore important et tend à favoriser le gain de l'impulsion faible <sup>h</sup>. L'énergie présente alors un maximum pour  $\tau < 0$  et un maximum pour  $\tau > 0$  quand les deux phénomènes s'équilibrent (figure V.19). On peut prédire le comportement pour le cas  $\phi = \pi/2$  à partir d'un raisonnement analogue au précédent : seuls les déplacements lumineux n'entrent pas

<sup>h</sup> L'échange d'énergie de l'impulsion forte vers l'impulsion faible est d'autant plus important que les impulsions se recouvrent.



en compte et la courbe présente un maximum au voisinage de  $\tau = 0$ . Si le champ de contrôle n'est pas suffisamment intense, cette explication ne s'applique pas - comme c'est le cas sur la figure V.18 pour  $\theta_F = 0,5\pi$ .

Les figures V.20 et V.21, montrent particulièrement bien ces différents phénomènes. Nous retrouvons aussi bien l'existence des différents points remarquables, tels les extrema locaux, que le comportement asymptotique de l'énergie. La simulation montre, malgré des valeurs différentes de celles de l'expérience, un accord qualitatif particulièrement satisfaisant avec l'expérience. Notons que les différents "nœuds" (croisements entre les courbes  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ ) observés sur la simulation sont également présents sur la courbe expérimentale mais restent difficiles à résoudre.

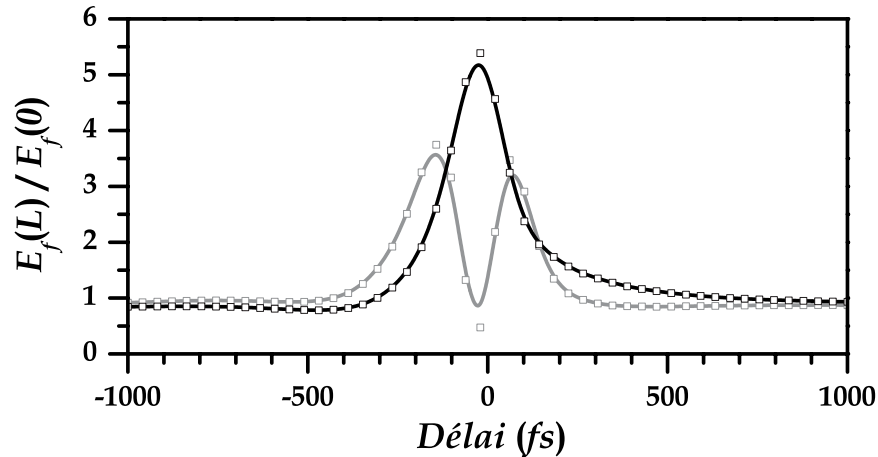


FIG. V.20 – Energie du champ faible - Effet du recouvrement temporel (Simulation 9,5 nm FWHM à 794,76 nm,  $\alpha_0 L = 7500$ ,  $\theta_f = 0, 1\pi$ ,  $\theta_F = 1, 5\pi$ )

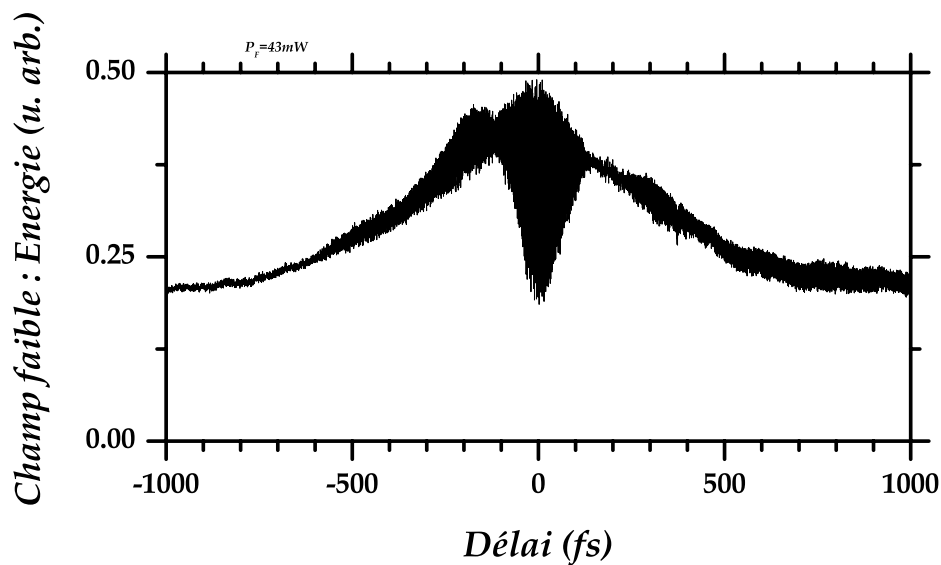


FIG. V.21 – Energie du champ faible - Effet du recouvrement temporel ( $E_F = 43\mu\text{J}$ )

## V.4 Profil temporel de l'impulsion

Nous considérons ici à nouveau, le cas où l'impulsion faible et l'impulsion intense de contrôle se recouvrent temporellement. En l'absence de champ fort  $E_F = 0$ , l'impulsion faible transmise (pointillés gris figure V.22) est distordue et présente un profil temporel avec la "queue de dispersion" caractéristique de la propagation résonante dans un système à deux niveaux (cf II.2.1.2 et/ou III.3.1). Sur la figure V.22, nous avons représenté l'impulsion transmise pour  $E_F = 66\mu\text{J}$ , dans les cas  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ .

Pour  $\phi = \pi/2$ , l'impulsion présente un gain important, soit ici approximativement un facteur 2, qui apparaît pour  $t > -100$  fs. Ce gain n'apparaît en effet que lorsque l'impulsion intense crée une inversion de population suffisante. Au début de l'impulsion ( $t < -100$  fs), cette inversion de population est faible et l'impulsion faible ne présente aucun gain.

Pour  $\phi = 0$ , sous l'influence des déplacements lumineux, le champ faible interagit de manière non résonante avec le système atomique, et n'est alors pratiquement pas affecté. Nous trouvons une forme temporelle proche de celle de l'impulsion initiale.

Aussi bien pour  $\phi = 0$  que pour  $\phi = \pi/2$ , les fluctuations observées sur les profils temporels sont dues aux fluctuations de la phase relative entre les deux impulsions qui n'est pas asservie et nous contraint à procéder rapidement à l'acquisition des profils temporels. En particulier, le pic observé au maximum de l'impulsion quand  $\phi = 0$  n'est dû qu'à cette fluctuation.

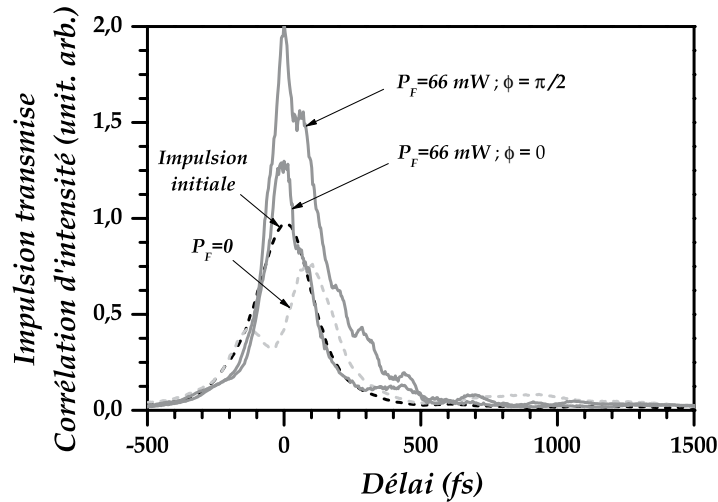


FIG. V.22 – Profil temporel de l'impulsion transmise ( $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ )

Sur la figure V.23, nous avons représenté l'acquisition des profils temporels de l'impulsion faible transmise pour différentes puissances du champ fort. La stabilité temporelle de la phase n'étant pas suffisante pour réaliser une acquisition dans de bonnes conditions, nous avons introduit une fluctuation de phase rapide afin d'obtenir les enveloppes correspondantes aux cas  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ . Pour cela nous avons disposé un système vibrant (moteur avec masselotte excentrique qui introduit un balourd) sur la table de translation qui contrôle le délai entre l'impulsion forte et l'impulsion faible.

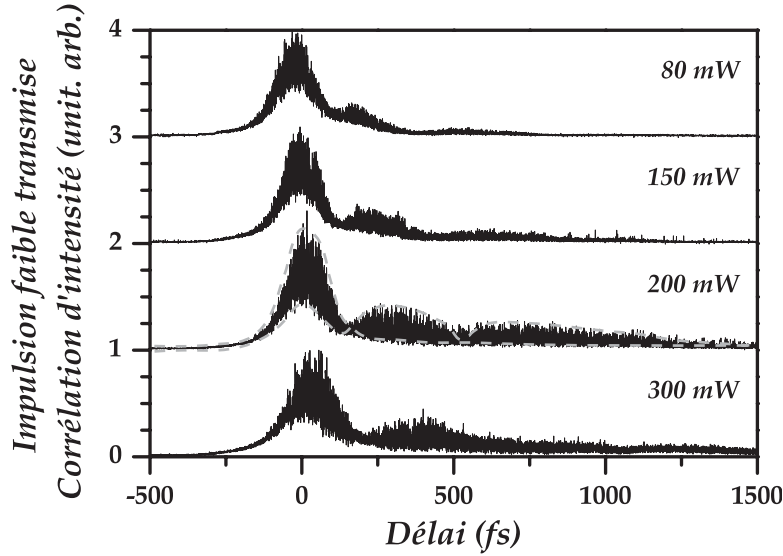


FIG. V.23 – Profil temporel de l’impulsion transmise (phase fluctuante) : Pour  $E_F = 200\mu\text{J}$  nous avons illustré schématiquement l’allure des enveloppes correspondantes aux cas  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ .

Nous pouvons alors distinguer sans trop de difficultés les deux enveloppes correspondantes à  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ . A titre d’exemple, nous avons représenté schématiquement ces deux enveloppes en traits pointillés gris sur la courbe obtenue pour  $E_F = 200\mu\text{J}$  ( $P_F = 200\text{ mW}$ , figure V.23). Comme sur la figure V.22, nous retrouvons un profil d’impulsion courte correspondant à  $\phi = 0$ . En revanche, contrairement aux résultats précédents, quand  $\phi = \pi/2$ , l’amplification porte sur la "queue de dispersion, dont l’amplitude croît quand  $E_F$  augmente.

## V.5 Conclusion

Nous avons mis en évidence un processus d’interférence non observé jusqu’à maintenant. Ce processus fait apparaître des oscillations à la période optique moitié quand le retard  $\tau$  introduit une phase relative  $\phi = \omega_L\tau$  entre l’impulsion faible et l’impulsion de contrôle. L’originalité de cette configuration réside dans le fait qu’elle ne fait intervenir qu’un couple de transitions à un photon sous la forme d’une interférence entre un chemin d’émission et un chemin d’absorption du champ faible. Le point crucial concerne l’action du champ fort qui, sous l’effet du couplage intense qu’il produit sur les transitions concernées, crée un mélange des états de départ et d’arrivée. Dans la base adiabatique les états sont mélangés avec des poids identiques des états stationnaires. Les deux chemins du champ faible interfèrent alors avec des amplitudes d’égales importances. Notons qu’à longueur d’onde donnée, cette configuration présente une sensibilité à une différence de trajet optique entre deux impulsions, deux fois plus importante qu’une méthode interférométrique usuelle. Nous pouvons remarquer que la phase découple le rôle des parties réelle et imaginaire du champ faible (couplages de la forme  $\cos\phi$  et  $\sin\phi$ ). Nous avons donc pu mener une

analyse simplifiée du phénomène pour les cas particuliers  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ . Lorsque nous avons pris en compte, l'effet du couplage spin-orbite, nous avons mis en évidence le rôle du blocage de paquet d'onde, qui altère la dépendance du gain en fonction de l'énergie du champ de contrôle. Enfin quand nous avons analysé le rôle du recouvrement temporel entre l'impulsion faible et l'impulsion de contrôle nous avons fait apparaître un mécanisme de compétition entre les déplacements lumineux et le transfert d'énergie de l'impulsion forte vers l'impulsion faible.

Les résultats théoriques des simulations que nous avons présentés (calculés pour des conditions différentes mais assez proches de l'expérience) montrent un bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux obtenus. Il nous reste cependant encore à développer une procédure d'ajustement. Néanmoins, vu la sensibilité et le nombre de paramètres, cette procédure nécessite de mettre en oeuvre une méthode de moindres carrés que nous comptons développer mais qui reste malgré tout coûteuse en temps de calcul.

Le transfert d'énergie du champ de contrôle vers le champ faible a été établi. Nous pouvons nous demander comment évoluent ces mécanismes de transfert lorsque l'énergie de l'impulsion faible croît. En d'autres termes, cela reviendra à étudier l'évolution d'une impulsion intense de polarisation elliptique dans un tel système atomique.

## CONCLUSION

Dans cette thèse nous avons premièrement considéré la propagation résonante d'impulsions ultracourtes uniques dans un système à deux niveaux. Nous avons établi les équations qui régissent la propagation cohérente et dont résulte un certain nombre de propriétés générales. Les impulsions limitées par transformée de Fourier en champ faible présentent généralement une distorsion de l'enveloppe du champ électrique. Cette distorsion, due à la phase spectrale accumulée au cours de la propagation, peut être compensée en utilisant un dispositif de mise en forme. Notons que cette compensation n'est strictement réalisée que pour une valeur donnée de l'épaisseur optique. Cette technique utilisant ici un dispositif de mise en forme de haute résolution, a montré une efficacité spectaculaire compte tenu de la forme particulièrement aiguë de la phase spectrale à reproduire et qui varie rapidement autour de la résonance.

Par ailleurs, l'étude de la propagation des impulsions à dérive de fréquence, nous a permis de mettre en avant le rôle essentiel joué par le champ rayonné, qui est toujours responsable des distorsions du profil d'intensité. Dans ce cas précis, la dérive en fréquence de l'impulsion se retrouve "imprimée" sur le profil temporel de l'impulsion. Contrôler les effets de propagation implique alors de contrôler les propriétés du champ rayonné. En régime de champ fort ( $\theta_F > \pi$ ), le profil temporel et l'énergie des impulsions ne sont pas, ou très peu, altérés au cours de la propagation, pour des valeurs de l'épaisseur optique  $\alpha_0 L$  telles que  $\alpha_0 L \Delta_D \tau_F \ll \theta_F$ . Ceci fait des impulsions intenses, un outil idéal et assez robuste pour manipuler les systèmes quantiques. On peut modifier la réponse des atomes responsable des effets de propagation auxquels ces impulsions sont pratiquement insensibles, qu'elles soient résonantes ou *a fortiori* non résonantes.

Nous avons ensuite, dans un premier temps, examiné les conséquences des déplacements lumineux induits par des impulsions contrôle non résonantes, sur les effets de propagation ressentis par une impulsion faible résonante. L'analyse des phénomènes est simplifiée lorsqu'on se place dans la base adiabatique liée au champ fort. Dans un système à trois niveaux en échelle, les deux niveaux de plus haute énergie sont déplacés sous l'action du champ fort qui a une durée plus courte mais du même ordre que celle du champ faible. Le système est alors placé hors résonance par rapport au champ faible et subit un blocage de la population transférée dans le premier état excité. L'amplitude du dipôle responsable du champ rayonné est considérablement réduite. Sa phase est également modifiée dynamiquement et en conséquence sa fréquence instantanée varie dans le temps. A l'image des impulsions à dérive de fréquence, le déplacement lumineux transitoire induit par l'impulsion, apparaît sur le profil de l'impulsion transmise sous la forme de modulations. Elle peuvent s'interpréter comme des Franges de Ramsey temporelles. En effet, l'énergie du niveau déplacé apparaît à deux instants différents dont la phase relative varie suivant l'énergie considérée et donne alternativement une interférence constructive ou destructive. La durée caractéristique des modulations, plus courtes que la durée de l'impulsion initiale, traduit un enrichissement du spectre dont les cannelures résultent du processus d'interférences mentionné précédemment.

Dans un second temps, nous avons étudié l'excitation bichromatique d'un système à deux niveaux. Dans cette configuration, plusieurs phénomènes coexistent : on trouve notamment les déplacements lumineux et les transitions non adiabatiques induits par le champ fort. L'examen des différentes configurations géométriques (angle, délai) permet de séparer ces effets. Concernant les déplacements lumineux (lorsque les impulsions font un angle), excepté le nombre de niveaux déplacés <sup>a</sup>, on retrouve le même type de modulations sur le profil temporel de l'impulsion transmise, que celles obtenues dans le cas du système à trois niveaux <sup>b</sup>. Lorsqu'il y a un délai entre les deux impulsions qui se propagent colinéairement, seul l'effet des transitions non adiabatiques est visible. Ces phénomènes, parfois très faibles, sont alors amplifiés par interférence avec le champ faible résonant et se manifestent sur le spectre transmis. L'étude expérimentale d'excitation bichromatique que nous avons réalisée, a permis en plus de montrer un phénomène de couplage entre la dispersion et le gain : la fonction de dispersion résonante apparaît sur le gain de l'impulsion faible.

Système étudié	Caractéristiques principales
Système à trois niveaux	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Blocage du transfert de population dans l'état intermédiaire,</li> <li>- Modulations du profil d'intensité contrôlable par déplacement lumineux,</li> <li>- et Enrichissement du spectre (bandes latérales).</li> </ul>
Excitation bichromatique	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Non colinéaire <math>\eta \neq 0, \tau = 0</math> :</li> <li>- Modulations du profil d'intensité contrôlable par déplacement lumineux,</li> <li>- et Enrichissement du spectre (bandes latérales),</li> <li>• Colinéaire <math>\eta = 0, \tau \neq 0</math> :</li> <li>- Sensibilité aux transitions non adiabatiques,</li> <li>• Colinéaire <math>\eta = 0, \tau = 0</math> :</li> <li>- Couplage gain - dispersion</li> </ul>
Polarisation croisées	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Interférences à <math>2\phi = 2\omega_L\tau</math></li> <li>- Découplage entre chemins parallèles résonants et chemins croisés non résonants</li> <li>- Compétition entre gain et déplacements lumineux</li> <li>- Interférences et déplacements lumineux : Contrôle de la forme temporelle</li> </ul>

Nous avons enfin étudié le cas où l'impulsion de contrôle est également résonante et polarisée orthogonalement à l'impulsion faible. Les impulsions interagissent sur un système à quatre niveaux dégénérés deux à deux. Cette étude a mis en évidence un phénomène tout

<sup>a</sup> Dans l'excitation bichromatique, les deux niveaux sont déplacés, alors que dans le système à trois niveaux seul le niveau excité de la transition "sondée" par le champ faible est déplacé.

<sup>b</sup> Notons qu'on a ici une description unique de deux situations *a priori* très différentes, qui montre par ailleurs que quand la durée de l'impulsion de contrôle augmente, on passe continûment d'une situation où les modulations sont visibles, à une situation de "transparence" pour laquelle l'impulsion faible ne présente pratiquement aucune distorsion (pas de "queue de dispersion" ni de modulation subdurée)

à fait original et, à notre connaissance, jamais observé auparavant. Lorsqu'on varie finement le délai, on change la phase relative  $\phi$  entre les impulsions : les quantités atomiques ainsi que l'énergie de l'impulsion faible transmise présentent en fonction du délai une oscillation de période 1,32 fs, soit la moitié de la période optique de la transition considérée (rubidium :  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$  à 794,76 nm). Ce phénomène ne peut être observé facilement <sup>c</sup> que sous l'action d'un champ fort couplant fortement les niveaux (de même  $M_J$ ) du système. Ainsi les chemins d'émission et d'absorption du champ faible ont des amplitudes comparables et interfèrent avec un contraste important. L'analyse du phénomène dans la base adiabatique montre que pour  $\phi = 0$  et  $\phi = \pi/2$ , les différents niveaux d'énergie sont respectivement connectés soit en couplage croisé (niveaux de déplacements opposés), soit en couplage parallèle (niveaux de même déplacement). L'évolution du gain en fonction de l'intensité de l'impulsion de contrôle a révélé le blocage du paquet d'onde (lié à la présence du niveau spin-orbite  $P_{3/2}$ ). Cette même évolution en fonction du recouvrement temporel entre les impulsions, a fait apparaître un mécanisme de compétition entre le gain et les déplacements lumineux. L'action conjointe des interférences de chemins et des déplacements lumineux, nous a permis de contrôler aussi bien le gain que la forme temporelle de l'impulsion faible.

Les études des systèmes à deux et trois niveaux, sont essentiellement basées sur des idées théoriques dont la mise en œuvre expérimentale n'est limitée que par les sources disponibles et reste envisageable (longueurs d'onde différentes du couple d'impulsions pour le système à trois niveaux, et sources accordables distinctes mais synchrones pour l'excitation bichromatique). Les résultats préliminaires que nous avons obtenus en excitation bichromatique, montrent un couplage gain-dispersion lorsque le système sondé est piloté par une impulsion intense. Une étude théorique et expérimentale de ce phénomène est nécessaire pour comprendre les mécanismes mis en jeu lors de la manipulation de la forme temporelle des impulsions par une telle excitation. L'étude des géométries non colinéaires, nous a conduit à développer récemment, un programme capable de simuler la propagation en régime de champ fort pour de telles configurations. Nous avons montré que les déplacements lumineux permettent de contrôler le profil temporel d'intensité. On peut alors envisager l'utilisation d'un milieu gazeux pour obtenir une forme d'impulsion programmable soit des impulsions très intenses, soit des impulsions dont les domaines de longueurs d'onde, interdisent le recours à des dispositifs "classiques", telles que les impulsions VUV (Vacuum Ultra Violet). On peut par exemple mettre en forme l'impulsion de contrôle avec les dispositifs classiques, puis utiliser cette impulsion convenablement mise en forme pour façonner une impulsion VUV. L'enrichissement spectral qui accompagne ces déplacements lumineux est également un résultat prometteur, puisqu'il promet *a priori* de diminuer la durée limitée par transformée de Fourier. Nous avons également montré qu'il est possible de s'affranchir des effets de propagation, soit en compensant directement avec un façonneur la phase spectrale introduite, soit en créant une fenêtre de transparence à l'aide d'une impulsion intense. La conséquence immédiate est que l'on peut espérer se propager dans un milieu résonant sur de longues distances, puis lorsque les conditions de transparence ne sont plus réalisées, interagir fortement avec le milieu résonant. On peut alors réaliser une excitation "sélective

---

<sup>c</sup> Nous avons montré que les oscillations existent aussi en champ faible mais elles sont excessivement faibles puisqu'elles résultent de l'interférence entre un processus du premier ordre et un processus du troisième ordre.

en position" sur de grandes distance. La sensibilité aux transitions non adiabatiques qui a été mise en évidence. Ces phénomène dépendent assez fortement de la forme temporelle des impulsions. Le minimum de transfert non adiabatique, est obtenu pour la sécante hyperbolique. On peut se demander si l'utilisation d'un algorithme d'optimisation aboutit à cette solution particulière. Comme l'impulsion faible est une sonde très sensible de ces effets, nous pouvons alors imaginer de mettre en œuvre expérimentalement la recherche d'un tel optimum, ce qui autrement très difficile vu la faiblesse des effets. Cette étude doit se faire pour une aire d'impulsion constante.

Dans le système à quatre niveaux, les mécanismes d'échange d'énergie entre les deux impulsions, montrent un comportement assez complexe. L'évolution de ces mécanismes, dans le cas où l'impulsion faible devient progressivement plus intense, reste à déterminer. Si par ailleurs, on considère l'interaction d'une seule impulsion intense de polarisation quelconque dans ce schéma d'excitation, on peut alors se demander quelle va être l'évolution de la polarisation au cours de la propagation.



## Annexe A

# TAUX D'IONISATION DANS LE RUBIDIUM

### A.1 Motivations

Lorsqu'on travaille dans le rubidium (figure A.2) avec des impulsions laser accordées sur sa transition  $5s\ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p\ ^2P_{1/2}$  à 794,76 nm, il faut prendre quelques précautions si l'on veut pouvoir considérer ce système comme un système à deux niveaux. En effet le continuum de l'atome ( $IT=4,18\text{ eV} \approx 33700\text{ cm}^{-1}$ ) peut être excité à une énergie qui correspond à l'absorption de trois photons du laser ( $3\hbar\omega_L=4,68\text{ eV} \approx 37750\text{ cm}^{-1}$ ). Cette ionisation est facilitée par la présence des états liés  $P_{3/2}$  et surtout  $D_{3/2,5/2}$  qui jouent le rôle d'états relais.

Afin de s'assurer de la validité du modèle à deux niveaux, il est non seulement nécessaire d'estimer le taux d'ionisation vers le continuum  $|\varepsilon\rangle$  mais aussi la probabilité totale d'excitation hors du système à deux niveaux. Si on veut en plus traiter explicitement le couplage spin-orbite responsable de l'écart énergétique entre  $P_{1/2}$  et  $P_{3/2}$ , il suffit d'estimer la probabilité totale d'excitation vers le continuum et les états  $D_{3/2,5/2}$ .

Nous considérerons l'action d'une impulsion laser infrarouge sur un atome de rubidium initialement dans son état fondamental. L'axe  $z$  coïncide avec l'axe de polarisation du laser et sera pris comme axe de quantification. Bien que proche en énergie des états  $D_{3/2,5/2}$ , nous n'incluons pas l'état  $7S_{1/2}$  dans le modèle car nous ne disposons pas des valeurs des intégrales radiales vers le continuum. Cependant en raison d'un écart à la résonance environ deux fois plus important et une force d'oscillateur deux fois plus faible, il semble cependant assez raisonnable d'ignorer le rôle de cet état.

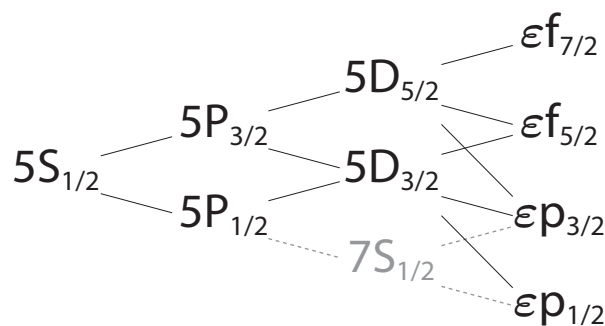


FIG. A.1 – Etats et chemins pris en compte pour le calcul du taux d'ionisation.

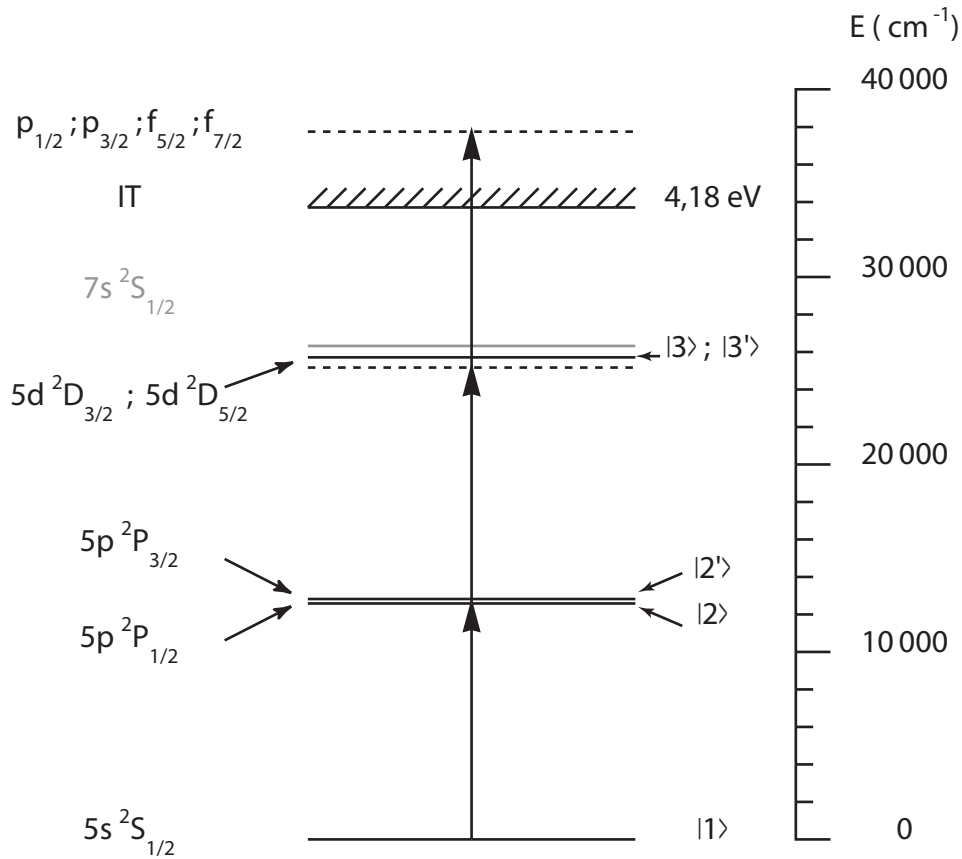


FIG. A.2 – Energie et libellé des états pris en compte pour le calcul du taux d'ionisation.

## A.2 Calcul des moments dipolaires

Du fait des règles de sélection pour des transitions dipolaires électriques en polarisation linéaire :

$$\Delta J = 0, \pm 1 \quad (\text{A.1a})$$

$$\Delta L = \pm 1 \quad (\text{A.1b})$$

$$\Delta M_J = 0 \quad (\text{A.1c})$$

les états sont connectés comme illustré le schéma A.1. On peut noter que pour l'état  $D_{3/2}$  et ceux du continuum, il existe plusieurs chemins aboutissant au même état. Ces chemins peuvent interférer et affecter la probabilité totale d'excitation. Comme l'interférence dépend des amplitudes de chaque états mais aussi des valeurs et des signes relatifs des moments dipolaires, il faut être vigilant quant au calcul des éléments de couplage. Par ailleurs, dans l'état fondamental on a statistiquement la moitié des atomes avec  $M_J = \frac{1}{2}$  et  $M_J = -\frac{1}{2}$  pour l'autre moitié. Comme les résultats sont invariants par inversion, on ne traitera donc que le cas  $M_J = \frac{1}{2}$ , en considérant tous les atomes initialement dans cet état. Les moments dipolaires sont calculés :

- dans les états liés à partir des forces d'oscillateurs,
- dans le continuum à partir des intégrales radiales [98].

Pour traiter le continuum on dispose de deux approches. Soit on modélise le continuum par un quasi-continuum d'états discrets régulièrement espacés, soit encore on procède à l'élimination adiabatique du continuum. C'est cette dernière solution que nous retenons dans le soucis de préserver le temps de calcul, et de plus la répartition exacte des populations dans le continuum ne présente pas d'intérêt dans le problème que nous souhaitons traiter.

Dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, les éléments de couplage du Hamiltonien d'interaction entre les différents états  $|n(LS)JM_J\rangle$ , font intervenir l'opérateur moment dipolaire dont seule la composante  $\mu_0$  intervient quand on prend l'axe de polarisation comme axe de quantification. Entre deux états  $|k\rangle$  et  $|l\rangle$ , l'élément de matrice est alors proportionnel à :

$$\mu_{kl} = \langle k | \vec{e} \cdot \vec{\mu} | l \rangle = \langle n(LS)JM_J | \vec{e} \cdot \vec{\mu} | n'(L'S')J'M'_J \rangle = \langle \gamma JM_J | \mu_0 | \gamma' J' M'_J \rangle \quad (\text{A.2})$$

Les éléments de couplage précédents, s'expriment dans la base des états propres, selon :

$$\langle \gamma JM_J | \mu_0 | \gamma' J' M'_J \rangle = (-1)^{J-M} \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ -M_J & 0 & M_{J'} \end{pmatrix} (\gamma J || \mu_0 || \gamma' J') \quad (\text{A.3})$$

où

$$\begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ -M_J & 0 & M_{J'} \end{pmatrix}$$

est le symbole  $3-j$  de Wigner et  $(\gamma J || \mu_0 || \gamma' J')$  désigne l'élément de matrice réduit entre les états de moment cinétique total  $J$  et  $J'$  ( $\gamma$  représente l'ensemble des nombres quantiques  $n$ ,  $S$  et  $L$ ). Il est plus simple d'exprimer cette élément réduit en fonction de l'élément réduit  $(nL || \mu_0 || n'L')$  et les coefficients  $6-j$  en utilisant la relation [99] :

$$(\gamma J || \mu_0 || \gamma' J') = (-1)^{1+S+L+J'} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)} \begin{Bmatrix} L & J & S \\ J' & L' & 1 \end{Bmatrix} (nL || \mu_0 || n'L') \quad (\text{A.4})$$

L'élément réduit  $(nL || \mu_0 || n'L')$  qui s'écrit :

$$(nL || \mu_0 || n'L') = -\sqrt{\max(L, L')} R_{nL}^{\varepsilon L'} \quad (\text{A.5})$$

a en effet une expression simple en fonction des intégrales radiales  $R_{nL}^{\varepsilon L'}$  [98]. Les valeurs des intégrales radiales représentées sur la figure A.3, sont reportées dans le tableau A.1.

E (Ry)	E (eV)	$h\nu$ (eV)	$\lambda$ (nm)	$R_{\ell}^{\ell-1}$	$R_{\ell}^{\ell+1}$
0	0	0,983	1260,732	-1,091·10 <sup>1</sup>	-3,365·10 <sup>1</sup>
0,1	1,361	2,344	528,943	-2,355	-8,749
0,2	2,721	3,705	334,679	-1,006	-3,997
0,4	5,442	6,426	192,95	-3,38 ·10 <sup>-1</sup>	-1,453
0,6	8,164	9,147	135,549	-1,558·10 <sup>-1</sup>	-7,256·10 <sup>-1</sup>
0,8	10,885	11,868	104,47	-8,101·10 <sup>-2</sup>	-4,272·10 <sup>-1</sup>
1,0	13,606	14,589	84,984	-4,357·10 <sup>-2</sup>	-2,808·10 <sup>-1</sup>
...	...	...	...	...	...

TAB. A.1 – Intégrales radiales de  $5D$  vers le continuum pour le rubidium (Rb I) (extrait de [98])

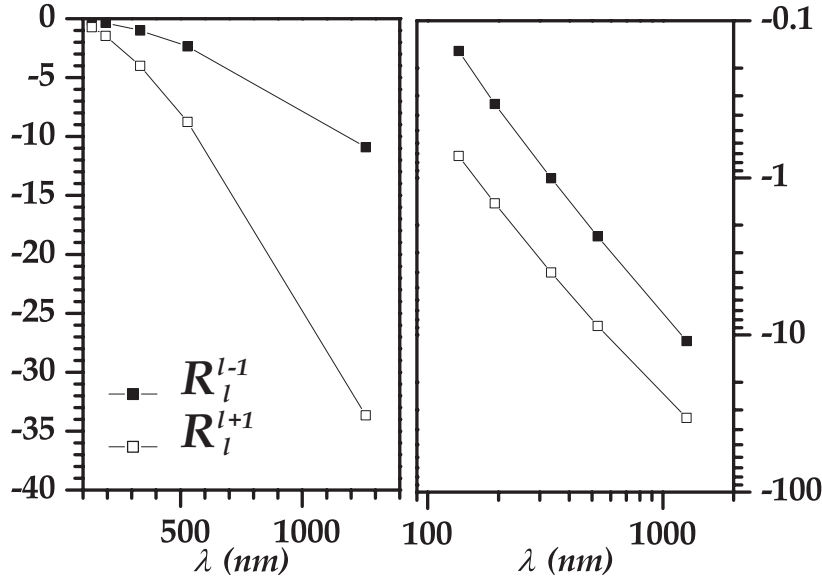


FIG. A.3 – Valeurs des intégrales radiales  $\Delta L = \pm 1$  sur la transition  $5D$  vers le continuum pour le rubidium (Rb I) (cf. tableau A.1)

### A.3 Equations d'évolution

La fonction d'onde totale peut s'écrire :

$$|\psi(t)\rangle = |\phi_b(t)\rangle + |\phi_c(t)\rangle \quad (\text{A.6})$$

où  $|\phi_b(t)\rangle$  et  $|\phi_c(t)\rangle$  sont respectivement la fonction d'onde des états liés (la base des états liés est restreinte aux états représentés sur la figure A.2) et la fonction d'onde dans le continuum. Elle sont définies par :

$$|\phi_b(t)\rangle = a_1(t) |1\rangle + (a_2(t) |2\rangle + a_{2'}(t) |2'\rangle) e^{-i\omega_L t} + (a_3(t) |3\rangle + a_{3'}(t) |3'\rangle) e^{-i2\omega_L t} \quad (\text{A.7a})$$

$$|\phi_c(t)\rangle = \sum_{\ell, J} \int_0^{\infty} a_{\ell, J}(\epsilon')(t) e^{-i\omega(\epsilon')t} |\epsilon', \ell, J\rangle d\epsilon' \quad (\text{A.7b})$$

Dans l'expression de  $|\phi_b\rangle$ , les kets sont les états liés libellés par énergie croissante de 1 à 3' (figure A.2). Les kets  $|\epsilon', \ell, J\rangle$  qui apparaissent dans la fonction d'onde du continuum, correspondent aux états de moment cinétique  $\ell$ , de moment cinétique total  $J = \ell \pm 1/2$ , et d'énergie  $\epsilon'$  au-dessus du seuil d'ionisation (IT). A partir de l'équation de Schrödinger dépendante du temps et dans l'approximation de l'onde tournante (RWA), on obtient l'équation d'évolution (une par état) de l'amplitude de probabilité  $a_{\ell J}(\epsilon)(t)$  donnée par :

$$\dot{a}_{\ell J}(\epsilon)(t) = i \frac{A(t)}{2\hbar} \left( \mu_3^{\epsilon \ell J} a_3(t) + \mu_{3'}^{\epsilon \ell J} a_{3'}(t) \right) e^{i[\omega(\epsilon) - 3\omega_L]t} \quad (\text{A.8})$$

avec  $\hbar\omega(\epsilon)$  l'énergie de l'état prise depuis le fondamental. Les coefficients  $\mu_3^{\epsilon \ell J}$  et  $\mu_{3'}^{\epsilon \ell J}$  sont les moments dipolaires entre le continuum et les états  $|3\rangle$  et  $|3'\rangle$  (moment dipolaire par unité d'énergie en C.m.J<sup>-1</sup>). Par ailleurs, l'équation d'évolution de l'amplitude  $a_3(t)$

$$i\hbar\dot{a}_3(t) = \langle 3 | V_{dip}(t) | \phi_b(t) \rangle e^{i2\omega_L t} + \hbar\Delta_3 a_3(t) - \frac{A^*(t)}{2} \sum_{\ell, J} \int_0^{\infty} \mu_3^{\epsilon \ell J} a_{\ell, J}(\epsilon)(t) e^{-i[\omega(\epsilon) - 3\omega_L]t} d\epsilon \quad (\text{A.9})$$

Si on porte la relation A.8 dans l'expression de la quantité  $I_c(t)$  définie par :

$$I_c(t) = \frac{A^*(t)}{2} \sum_{\ell, J} \int_0^{\infty} \mu_3^{\ell J} a_{\ell, J}(\epsilon) e^{-i[\omega(\epsilon) - 3\omega_L]t} d\epsilon \quad (\text{A.10})$$

on obtient alors :

$$I_c(t) = i \frac{A^*(t)}{4\hbar} \sum_{\ell, J} \int_0^{\infty} \int_{-\infty}^t \mu_3^{\ell J} A(t') \left( \mu_3^{\ell J} a_3(t') + \mu_{3'}^{\ell J} a_{3'}(t') \right) e^{-i[\omega(\epsilon) - 3\omega_L](t-t')} dt' d\epsilon \quad (\text{A.11})$$

Comme le montre la figure A.3, les intégrales radiales et donc les moments dipolaires sont des fonctions lentement variables dans l'intervalle d'énergie considéré. On peut donc effectuer l'intégration sur  $\epsilon$  en considérant les valeurs des  $\mu_{3'}^{\ell J}$  comme constantes et égales à la valeur prise pour  $\omega(\epsilon) = 3\hbar\omega_L$ . Après intégration, le résultat s'écrit finalement :

$$I_c(t) \approx \frac{i\pi}{8} |A|^2(t) \left( \bar{\mu}_{3\epsilon}^2 a_3(t) + \kappa_{33'\epsilon} a_{3'}(t) \right) \quad (\text{A.12})$$

L'équation d'évolution de l'amplitude  $a_{3'}(t)$  est analogue à celle de  $a_3(t)$ . En portant la relation A.12 dans ces équations, on aboutit à :

$$i\hbar \dot{a}_3(t) = \langle 3 | V_{\text{dip}}(t) | \phi_b(t) \rangle e^{i2\omega_L t} + \hbar \Delta_3 a_3(t) - \frac{i\pi}{8} |A|^2(t) \left( \bar{\mu}_{3\epsilon}^2 a_3(t) + \kappa_{33'\epsilon} a_{3'}(t) \right) \quad (\text{A.13a})$$

$$i\hbar \dot{a}_{3'}(t) = \langle 3' | V_{\text{dip}}(t) | \phi_b(t) \rangle e^{i2\omega_L t} + \hbar \Delta_{3'} a_{3'}(t) - \frac{i\pi}{8} |A|^2(t) \left( \bar{\mu}_{3'\epsilon}^2 a_{3'}(t) + \kappa_{33'\epsilon} a_3(t) \right) \quad (\text{A.13b})$$

Les termes  $\langle 3 | V_{\text{dip}}(t) | \phi_b(t) \rangle$  et  $\langle 3' | V_{\text{dip}}(t) | \phi_b(t) \rangle$  désignent la projection sur les états  $|3\rangle$  et  $|3'\rangle$  de la fonction d'onde des états liés  $|\phi_b(t)\rangle$  qui évolue sous l'action de l'hamiltonien d'interaction dipolaire électrique  $V_{\text{dip}}(t)$ . Les différents coefficients de couplage  $\bar{\mu}_{3\epsilon}^2$ ,  $\bar{\mu}_{3'\epsilon}^2$  et  $\kappa_{33'\epsilon}$ , qui font intervenir les moments dipolaires vers le continuum, sont définis comme :

$$\bar{\mu}_{3\epsilon}^2 = \sum_{\ell, J} \left( \mu_3^{\ell J} \right)^2 \quad (\text{A.14a})$$

$$\bar{\mu}_{3'\epsilon}^2 = \sum_{\ell, J} \left( \mu_{3'}^{\ell J} \right)^2 \quad (\text{A.14b})$$

$$\kappa_{33'\epsilon} = \sum_{\ell, J} \mu_3^{\ell J} \mu_{3'}^{\ell J} \quad (\text{A.14c})$$

## A.4 Resultats

La figure A.4 représente la population dans le continuum et dans le continuum plus les états  $D_{3/2,5/2}$ . Cette simulation est réalisée pour des impulsions laser limitées par transformées de Fourier et gaussiennes, de différentes largeurs spectrales (5, 10 et 20 nm FWHM) accordées sur la transition  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$ . Nous travaillons le plus souvent avec des impulsions de 10 nm : dans ces conditions la population dans le continuum plus les états  $D_{3/2,5/2}$  reste comprise entre

1% et 10%, si l'angle de Rabi de l'impulsion sur la transition  $5s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p \ ^2P_{1/2}$  reste compris entre  $3\pi$  et  $7\pi$ . Nous avons comparé nos résultats à ceux obtenus par Maas *et al.* [100, 101], qui ont réalisé des simulations analogues pour des impulsions laser accordées sur le niveau  $P_{3/2}$ . Ces simulations montrent sensiblement la même dépendance lorsque l'intensité des impulsions croît.

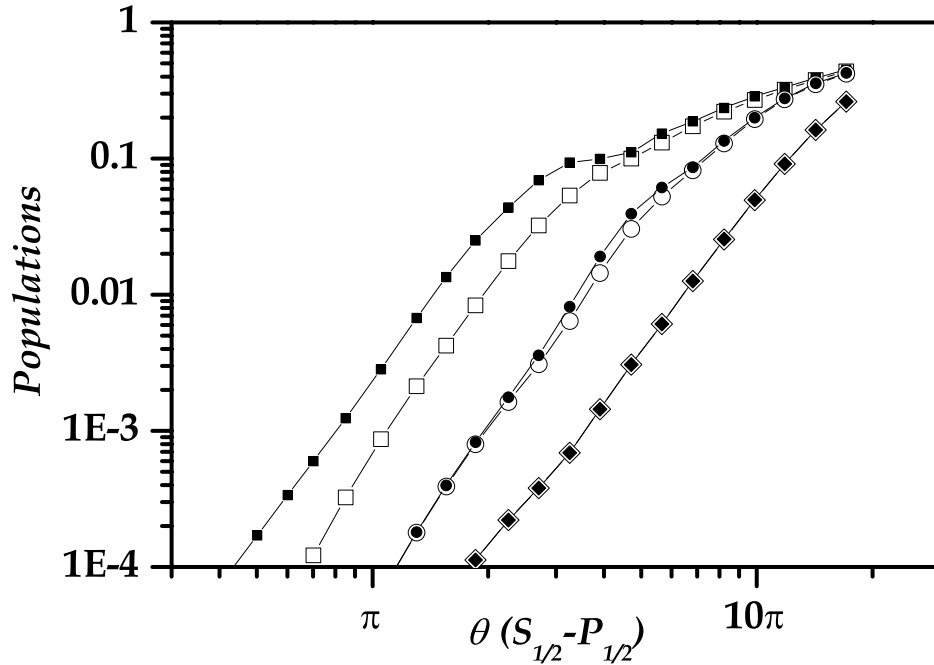


FIG. A.4 – Populations :  $\Delta\lambda_{1/2}=5$  nm  $-\diamond-$   $|\varepsilon_{l_J}\rangle$  et  $-\blacklozenge-$   $|5D\rangle + |\varepsilon_{l_J}\rangle$ ;  $\Delta\lambda_{1/2}=10$  nm  $-\circ-$   $|\varepsilon_{l_J}\rangle$  et  $-\bullet-$   $|5D\rangle + |\varepsilon_{l_J}\rangle$ ;  $\Delta\lambda_{1/2}=20$  nm  $-\square-$   $|\varepsilon_{l_J}\rangle$  et  $-\blacksquare-$   $|5D\rangle + |\varepsilon_{l_J}\rangle$

## Annexe B

# THÉORÈME DE MCCALL&HAHN

### B.1 Théorème de McCall&Hahn

Ce théorème, dérivé par S.L. McCall et E.L. Hahn, [7, 8] a permis entre autres d'expliquer le phénomène de transparence autoinduite (SIT *Self Induced Transparency*) observé initialement sur des résultats numériques puis confirmé par l'expérience ultérieurement. Les applications de ce théorème sont assez nombreuses pour expliquer des phénomènes physiques surprenants. On peut citer notamment le fractionnement ou scission d'impulsions intenses (*pulse breakup* [12]) ou encore son application à l'écho de photon [102].

La démonstration suivante du théorème de McCall&Hahn est une adaptation des démonstrations que le lecteur pourra trouver dans les ouvrages [5, 49] cités en référence.

Nous prenons comme point de départ l'équation de propagation linéarisée du champ électrique :

$$\frac{\partial \underline{A}}{\partial z}(z, t) = i \frac{\omega_{LC} \mu_0}{2} \underline{P}(z, t) \quad (\text{B.1})$$

Le champ électrique  $\underline{A}$  peut en général être complexe, c'est par exemple le cas d'une impulsion à dérive de fréquence. Le champ électrique peut donc s'écrire :

$$\underline{A}(z, t) = A(z, t) e^{i\varphi(z, t)} \quad (\text{B.2})$$

De la même manière la polarisation  $\underline{P}(z, t)$  est une quantité complexe, qui possède la même phase  $\varphi$  que le champ exciteur, et un terme de déphasage liée à la réponse du système. Faisons apparaître explicitement la phase  $\phi$  en écrivant :

$$\underline{P}(z, t) = \underline{P}(z, t) e^{i\varphi(z, t)} \quad (\text{B.3})$$

Le terme  $\underline{P}(z, t)$  contient le déphasage supplémentaire. Nous pouvons séparer l'évolution de  $\underline{A}(z, t)$ , en deux équations (couplées) qui portent sur le module  $A(z, t)$  et la phase  $\phi(z, t)$ , soit :

$$\frac{\partial A}{\partial z}(z, t) = -\frac{\omega_{LC} \mu_0}{2} \text{Im} \underline{P}(z, t) \quad (\text{B.4})$$

et

$$A(z, t) \frac{\partial \varphi}{\partial z}(z, t) = \frac{\omega_{LC} \mu_0}{2} \text{Re} \underline{P}(z, t) \quad (\text{B.5})$$

Il est donc nécessaire d'évaluer la polarisation  $\underline{P}(z, t)$  qui intervient aux seconds membres des équations d'évolution. Dans ce qui suit, nous ne traiterons pas l'équation d'évolution de la phase qui n'intervient pas dans l'évolution de  $A(z, t)$ .

Les atomes excités par l'impulsion laser, sont répartis sur une raie inhomogène dont le profil  $g(\Delta)$  est tel que :

$$\int g(\Delta)d\Delta = 1 \quad (\text{B.6})$$

où  $\Delta$  est l'écart à la résonance. La polarisation totale résultante  $\underline{P}(z, t)$  en tenant compte de la répartition statistique des atomes est donnée par

$$\underline{P}(z, t) = \int_{\Delta} p(\Delta; z, t)g(\Delta)d\Delta \quad (\text{B.7})$$

où  $p(\Delta; z, t)$  est la polarisation associée à la classe d'atomes compris entre  $\Delta$  et  $\Delta + \delta\Delta$ . Cette polarisation est donnée par :

$$\begin{aligned} p(\Delta; z, t) &= n\mu_{21}\sigma_{21}(\Delta; z, t) \\ &= n\mu_{21}(u(\Delta; z, t) + iv(\Delta; z, t)) \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

où  $u(\Delta; z, t)$  et  $v(\Delta; z, t)$  sont les composantes du vecteur de Bloch. Ces composantes  $u$ ,  $v$  et  $w$  sont définies à partir des cohérences et des populations de la matrice densité par :

$$\begin{cases} u(\Delta; z, t) = (\sigma_{21}(\Delta; z, t) + \sigma_{12}(\Delta; z, t))/2 \\ v(\Delta; z, t) = (\sigma_{21}(\Delta; z, t) - \sigma_{12}(\Delta; z, t))/2i \\ w(\Delta; z, t) = (\rho_{22}(\Delta; z, t) - \rho_{11}(\Delta; z, t))/2 \end{cases} \quad (\text{B.9})$$

L'équation d'évolution du vecteur de Bloch associé au système à deux niveaux s'écrit :

$$\dot{u}(\Delta; z, t) = -\Delta \cdot v(\Delta; z, t) \quad (\text{B.10a})$$

$$\dot{v}(\Delta; z, t) = \Delta \cdot u(\Delta; z, t) - \chi(z, t)w(\Delta; z, t) \quad (\text{B.10b})$$

$$\dot{w}(\Delta; z, t) = \chi(z, t)v(\Delta; z, t) \quad (\text{B.10c})$$

où

$$\chi(z, t) = \frac{\mu_{21}}{\hbar}A(z, t)$$

est la pulsation de Rabi associée au champ électrique  $A(z, t)$ . En utilisant B.4, B.7 et B.8, l'évolution de l'aire  $\mathcal{S}(z)$  au cours de la propagation s'écrit alors :

$$\frac{\partial \mathcal{S}}{\partial z}(z) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\mu_{21}}{\hbar} \frac{\partial A}{\partial z}(z, t)dt' = -\frac{n\omega_{LC}\mu_0\mu_{21}^2}{2\hbar} \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^T \int_{\Delta} v(\Delta; z, t')g(\Delta)d\Delta dt' \quad (\text{B.11})$$

Par commodité, nous introduisons le temps  $T_0$  à partir duquel l'impulsion est (supposée) terminée, c'est-à-dire que pour  $T \geq T_0$ , on a  $A(z, t) = 0$ . Cela facilite l'exposé et nous pourrions ultérieurement effectuer le passage à la limite  $T_0 \rightarrow +\infty$ . Avec cette définition on peut réécrire  $\mathcal{S}(z)$  comme :

$$\mathcal{S}(z) = \int_{-\infty}^{+\infty} \chi(z, t')dt' = \int_{-\infty}^{T_0} \chi(z, t')dt' \quad (\text{B.12})$$

Revenons sur l'équation B.11 : en utilisant l'équation B.10b et après intégration sur le temps, on peut écrire :

$$\frac{\partial \mathcal{S}}{\partial z}(z) = \frac{n\omega_{LC}\mu_0\mu_{21}^2}{2\hbar} \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{\Delta} \frac{1}{\Delta} u(\Delta; z, T)g(\Delta)d\Delta \quad (\text{B.13})$$



A ce stade, faisons intervenir  $T_0$ . En effet, pour  $T \geq T_0$ , le champ électrique est identiquement nul ( $\chi(z, t) = 0$ ). Les équations B.10a et B.10b s'écrivent alors (évolution "dans le noir") :

$$\begin{cases} \dot{u}(\Delta; z, T) &= -\Delta \cdot v(\Delta; z, T) \\ \dot{v}(\Delta; z, T) &= \Delta \cdot u(\Delta; z, T) \end{cases} \quad (\text{B.14})$$

La combinaison de ces deux équation permet d'écrire :

$$\frac{d}{dt}(u(\Delta; z, T) + iv(\Delta; z, T)) = i\Delta(u(\Delta; z, T) + iv(\Delta; z, T)) \quad (\text{B.15})$$

dont les solutions pour  $T \geq T_0$  sont données par :

$$(u + iv) = (u_0 + iv_0)e^{i\Delta(T-T_0)} \quad (\text{B.16})$$

où  $u_0$  et  $v_0$  sont les solutions de B.10 pour  $T = T_0$ . Il vient immédiatement que :

$$u(\Delta; z, T) = u_0 \cos \Delta(T - T_0) - v_0 \sin \Delta(T - T_0) \quad (\text{B.17})$$

Portons ce résultat dans l'équation B.13. Nous obtenons :

$$\frac{\partial \mathcal{S}}{\partial z}(z) = \frac{n\omega_L c \mu_0 \mu_{21}^2}{2\hbar} \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{\Delta} \frac{1}{\Delta} [u_0(\Delta; z) \cos \Delta(T - T_0) - v_0(\Delta; z) \sin \Delta(T - T_0)] g(\Delta) d\Delta \quad (\text{B.18})$$

Nous devons donc évaluer les deux termes (en  $\cos \Delta(T - T_0)$  et  $\sin \Delta(T - T_0)$ ) qui apparaissent dans l'intégrale précédente. Le premier terme s'écrit :

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \int_{\Delta} \frac{1}{\Delta} u_0(\Delta; z) \cos \Delta(T - T_0) g(\Delta) d\Delta \quad (\text{B.19})$$

Le terme  $\cos \Delta(T - T_0)$  est une fonction rapidement oscillante quand  $T$  est grand, si bien que cette intégrale n'a de valeurs significatives que pour  $\Delta \simeq 0$ . Nous pouvons alors écrire :

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \int_{\Delta} \frac{1}{\Delta} u_0(\Delta; z) \cos \Delta(T - T_0) g(\Delta) d\Delta \simeq \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{\Delta} \frac{1}{\Delta} u_0(0; z) g(\Delta) d\Delta \quad (\text{B.20})$$

Or d'après l'équation B.10a, nous avons  $u_0(0; z) = 0$ , si bien que

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \int_{\Delta} \frac{1}{\Delta} u_0(\Delta; z) \cos \Delta(T - T_0) g(\Delta) d\Delta \simeq \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{\Delta} \frac{1}{\Delta} u_0(0; z) g(\Delta) d\Delta = 0 \quad (\text{B.21})$$

Examinons maintenant le second terme. En utilisant la propriété selon laquelle :

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{\Delta} \sin \Delta(T - T_0) = \pi \delta(\Delta) \quad (\text{B.22})$$

on peut alors immédiatement calculer le second terme, et nous obtenons :

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \int_{\Delta} \frac{1}{\Delta} v_0(\Delta; z) \sin \Delta(T - T_0) g(\Delta) d\Delta = \pi v_0(0; z) g(0) \quad (\text{B.23})$$

Finalement ces calculs permettent de simplifier l'équation B.18 qui s'écrit maintenant :

$$\frac{\partial \mathcal{S}}{\partial z}(z) = -\frac{n\omega_L c \mu_0 \mu_{21}^2}{2\hbar} \pi v_0(0; z) g(0) \quad (\text{B.24})$$

Quand le système à deux niveaux est excité à résonance, il présente des oscillations de Rabi résonantes. Pour la composante  $v$  du vecteur de Bloch, la solution de B.10 correspondante s'écrit :

$$v_0(0; z) = \sin \mathcal{S}(z) \quad (\text{B.25})$$

Nous obtenons alors :

$$\frac{\partial \mathcal{S}}{\partial z}(z) = -\frac{n\omega_L c \mu_0 \mu_{21}^2}{2\hbar} \pi g(0) \sin \mathcal{S}(z) \quad (\text{B.26})$$

soit en introduisant le coefficient d'absorption à résonance :

$$\alpha_0 = \frac{n\omega_L c \mu_0 \mu_{21}^2}{\hbar} \pi g(0) \quad (\text{B.27})$$

le théorème de l'aire quantique ou théorème de McCall&Hahn sous sa forme usuelle :

$$\boxed{\frac{\partial \mathcal{S}}{\partial z}(z) = -\frac{\alpha_0}{2} \sin \mathcal{S}(z)} \quad (\text{B.28})$$

## Annexe C

# FORMULAIRE

### C.1 Fonction erreur - Intégrale de Dawson - Sinus, Cosinus et fonctions auxiliaires de Fresnel

La fonction erreur  $\text{erf}(x)$  est définie par :

$$\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt \quad (\text{C.1})$$

La fonction de Dawson  $\mathcal{D}(x)$  est définie par :

$$\mathcal{D}(x) = e^{-x^2} \int_0^x e^{t^2} dt \quad (\text{C.2})$$

On a :

$$\mathcal{D}(x) \simeq x \quad x \rightarrow 0 \quad (\text{C.3})$$

Son développement asymptotique est donné par :

$$\mathcal{D}(x) \simeq \frac{1}{2x} \quad x \rightarrow \pm\infty \quad (\text{C.4})$$

Le calcul de la fonction réponse d'une assemblée de système à deux niveaux, répartis sur un profil Doppler, fait apparaître la fonction  $w(x)$  définie comme :

$$w(x) = \frac{i}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-t^2} dt}{x-t} = \frac{2ix}{\pi} \int_0^{+\infty} \frac{e^{-t^2} dt}{x^2-t^2} = e^{-x^2} + \frac{2i}{\sqrt{\pi}} \mathcal{D}(x) \quad (\text{C.5})$$

Les cosinus  $C_F(x)$  et sinus  $S_F(x)$  de Fresnel sont définis par :

$$\begin{aligned} C_F(x) &= \int_0^x \cos\left(\pi \frac{t^2}{2}\right) dt \\ S_F(x) &= \int_0^x \sin\left(\pi \frac{t^2}{2}\right) dt \end{aligned} \quad (\text{C.6})$$

On a :

$$\begin{aligned} C_F(ix) &= iC_F(x) \\ S_F(ix) &= -iS_F(x) \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

Les relations entre  $C_F(x)$  et  $S_F(x)$  et les fonctions auxiliaires de Fresnel  $f(x)$  et  $g(x)$  sont données par :

$$\begin{aligned} f(x) &= [1/2 - S_F(x)] \cos\left(\pi\frac{x^2}{2}\right) - [1/2 - C_F(x)] \sin\left(\pi\frac{x^2}{2}\right) \\ g(x) &= [1/2 - C_F(x)] \cos\left(\pi\frac{x^2}{2}\right) + [1/2 - S_F(x)] \sin\left(\pi\frac{x^2}{2}\right) \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

et leurs relations réciproques :

$$\begin{aligned} C_F(x) &= \frac{1}{2} + f(x) \sin\left(\pi\frac{x^2}{2}\right) - g(x) \cos\left(\pi\frac{x^2}{2}\right) \\ S_F(x) &= \frac{1}{2} - f(x) \cos\left(\pi\frac{x^2}{2}\right) - g(x) \sin\left(\pi\frac{x^2}{2}\right) \end{aligned} \quad (\text{C.9})$$

Les développements asymptotiques de  $f(x)$  et  $g(x)$  sont donnés par :

$$\begin{aligned} f(x) &\approx \frac{1}{\pi x} + \mathcal{O}\left(\frac{1}{x^5}\right) \\ g(x) &\approx \frac{1}{\pi^2 x^3} + \mathcal{O}\left(\frac{1}{x^6}\right) \end{aligned} \quad (\text{C.10})$$

La fonction erreur peut s'exprimer à partir des cosinus  $C_F(x)$  et sinus  $S_F(x)$  de Fresnel par la relation :

$$\operatorname{erf}(x) = \sqrt{2}e^{-i\frac{\pi}{4}} \left( C_F\left(\sqrt{2/\pi}e^{i\frac{\pi}{4}}x\right) + iS_F\left(\sqrt{2/\pi}e^{i\frac{\pi}{4}}x\right) \right) \quad (\text{C.11})$$

## Bibliographie

- [1] D. Petrosyan and P. Lambropoulos, "Phase control of photoabsorption in optically dense medium," *Physical Review Letters* **85**(9), 1843–1846 (2000).
- [2] D. Petrosyan and P. Lambropoulos, "Phase control of resonantly enhanced photoionization in optically dense media," *Physical Review A* **63**, 043417 (2001).
- [3] T. Nakajima, J. Zhang, and P. Lambropoulos, "Coherent control of photoabsorption : application to real atoms," *Laser Physics* **8**(1), 29–33 (1998).
- [4] S. Carles, "Coherent control of ultrafast optical four-wave mixing with two-color  $\omega$ - $3\omega$  laser pulses," *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **72**(2), 023808 (2005).
- [5] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical resonance and two-level atoms* (Dover publications, New York, 1974).
- [6] M. D. Crisp, "Propagation of small-area pulses of coherent light through a resonant medium," *Physical Review A* **1**, 1604–11 (1970).
- [7] S. L. McCall and E. L. Hahn, "Self-Induced Transparency by Pulsed Coherent Light," *Physical Review Letters* **18**, 908 (1967).
- [8] S. L. McCall and E. L. Hahn, "Self-Induced Transparency," *Physical Review* **183**(2), 457–85 (1969).
- [9] C. K. N. Patel and R. E. Slusher, "Self-Induced Transparency in Gases," *Physical Review Letters* **19**(18), 1019–1022 (1967).
- [10] H. M. Gibbs and R. E. Slusher, "Optical Pulse Compression By Focusing In A Resonant Absorber," *Applied Physics Letters* **18**(11), 505–507 (1971).
- [11] D. Grischkowsky, E. Courtens, and J. A. Armstrong, "Observation of Self-Steepening of Optical Pulses with Possible Shock Formation," *Physical Review Letters* **31**(7), 422–425 (1973).
- [12] G. L. J. Lamb, "Analytical descriptions of ultrashort optical pulse propagation in a resonant medium," *Reviews of Modern Physics* **43**(2), 99–124 (1971).
- [13] G. L. J. Lamb, "Coherent-optical-pulse propagation as an inverse problem," *Physical Review A* **9**(1), 422–30 (1974).
- [14] D. Grischkowsky and J. A. Armstrong, "Self-defocusing of light by adiabatic following in rubidium vapor," *Physical Review A* **6**(4), 1566–70 (1972).
- [15] D. Grischkowsky, "Adiabatic following and slow optical pulse propagation in rubidium vapor," *Physical Review A* **7**(6), 2096–102 (1973).
- [16] M. O. Scully, "Enhancement of the Index of Refraction via Quantum Coherence," *Physical Review Letters* **67**(14), 1855–1858 (1991).
- [17] B. W. Shore, K. Bergmann, J. Oreg, and S. Rosenwaks, "Multilevel Adiabatic Population Transfer," *Physical Review A* **44**(11), 7442–7447 (1991).
- [18] K. J. Boller, A. Imamoglu, and S. E. Harris, "Observation of electromagnetically induced transparency," *Physical Review Letters* **66**(20), 2593 (1991).
- [19] J. P. Marangos, "Topical review electromagnetically induced transparency," *Journal of Modern Optics* **45**(3), 471–503 (1998).

- [20] M. Fleischhauer and M. D. Lukin, "Dark-state polaritons in electromagnetically induced transparency," *Physical Review Letters* **84**(22), 5094–7 (2000).
- [21] M. A. Bouchene, "Phase Control of Dispersion Effects for an Ultrashort Pulse-train Propagating in a Resonant Medium," *Physical Review A* **66**, 065801 (2002).
- [22] M. Jacquy, S. Bonhommeau, and M. A. Bouchene, "Experimental observation of phase dependent propagation of an ultrashort pulse-train propagating in a resonant medium," *Optics Letters* **28**(14), 1272–74 (2003).
- [23] J. E. Rothenberg and D. Grischkowsky, "Measurement of the phase of a frequency-swept ultrashort optical pulse," *Journal of the Optical Society of America B* **2**(4), 626–33 (1985).
- [24] J. E. Rothenberg and D. Grischkowsky, "Subpicosecond transient excitation of atomic vapor and the measurement of optical phase," *Journal of the Optical Society of America B* **3**(10), 1235–8 (1986).
- [25] C. Le Blanc, "Principes et réalisation d'une source laser terawatt femtoseconde basée sur le saphir dopé au titane. Caractérisation des impulsions produites et démonstration du régime d'intensité au niveau de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>," Docteur en sciences, Ecole Polytechnique (1993).
- [26] C. Nicole, "Dynamique de paquets d'ondes et contrôle cohérent temporel dans les atomes et les molécules d'alcalins," Docteur en sciences, Paul Sabatier (1998).
- [27] D. J. Kane and R. Trebino, "Characterization of Arbitrary Femtosecond Pulses Using Frequency-Resolved Optical Gating," *I.E.E.E. Journal of Quantum Electronics* **29**(2), 571–579 (1993).
- [28] C. Iaconis and I. A. Walmsley, "Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses," *Optics Letters* **23**(10), 792–794 (1998).
- [29] K. A. Walowicz, I. Pastirk, V. V. Lozovoy, and M. Dantus, "Multiphoton intrapulse interference. I. Control of multiphoton processes in condensed phases," *Journal of Physical Chemistry A* **106**(41), 9369–73 (2002).
- [30] S. Zamith, J. Degert, S. Stock, B. de Beauvoir, V. Blanchet, M. A. Bouchene, and B. Girard, "Observation of Coherent Transients in Ultrashort Chirped Excitation of an undamped Two-Level System," *Physical Review Letters* **87**(3), 033001 (2001).
- [31] S. Zamith, T. Martchenko, Y. Ni, S. A. Aseyev, H. G. Muller, and M. J. J. Vrakking, "Control of the production of highly charged ions in femtosecond-laser cluster fragmentation," *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **70**(1), 011201 (2004).
- [32] R. J. Levis, G. M. Menkir, and H. Rabitz, "Selective Bond Dissociation and Rearrangement with Optimally Tailored, Strong-Field Laser Pulses," *Science* **292**(5517), 709–713 (2001).
- [33] A. M. Weiner, "Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators," *Review of Scientific Instruments* **71**(5), 1929–60 (2000).
- [34] P. Tournois, "Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation

- of group delay time dispersion in laser systems,” *Optics Communications* **140**(4-6), 245–9 (1997).
- [35] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, and P. Tournois, “Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter : pulse compression and shaping,” *Optics Letters* **25**(8), 575–577 (2000).
- [36] C. Dorrer, F. Salin, F. Verluise, and J. P. Huignard, “Programmable phase control of femtosecond pulses by use of a nonpixelated spatial light modulator,” *Optics Letters* **23**(9), 709–11 (1998).
- [37] A. Monmayrant, “Façonnage et caractérisation d’impulsions ultracourtes. Contrôle cohérent de systèmes simples.” Thèse d’université, Université P.Sabatier (2005).
- [38] O. E. Martinez, “3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion : application to fiber compensation in 1.3-1.6  $\mu$  m region,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **23**(1), 59–64 (1987).
- [39] M. Danailov and I. Christov, “Time-space shaping of light pulses by Fourier optical processing,” *Journal of modern optics* **36**(4), 310–327 (1991).
- [40] R. W. Ditchburn and J. C. Gilmour, “The Vapor Pressures of Monatomic Vapors,” *Reviews of Modern Physics* **13**(6), 725–731 (1989).
- [41] M. A. Bouchiat, J. Guena, P. Jacquier, and M. Lintz, “Absolute Measurements of the Photoionization Cross Section of the  $5D_{5/2}$  Cs Excited State and of the Photodissociation Cross Section of  $\text{Cs}_2$  Between 540 and 550 nm,” *Chemical Physics Letters* **199**(1-2), 85–92 (1992).
- [42] V. Blanchet, “Spectroscopie femtoseconde et controle cohérent dans le césium atomique et le dimère de césium,” Thèse d’université, Université Paul Sabatier (1996).
- [43] K. O. Huber and G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure : IV Constants of Diatomic Molecules* (Van Nostrand Reinhold Company, 1979).
- [44] J. E. Rothenberg, D. Grischkowsky, and A. C. Balant, “Observation of the formation of the O pi pulse,” *Physical Review Letters* **53**(6), 552–5 (1984).
- [45] R. Netz, T. Feurer, and J. A. Fulop, “Influence of phase modulation on the reshaping of ultrashort laser pulses in resonant three-level systems,” *Physical Review A* **64**(4), 043808 (2001).
- [46] J. Poirson, F. Bretenaker, M. Vallet, and A. LeFloch, “Analytical and experimental study of ringing effects in a Fabry-Perot cavity. Application to the measurement of high finesse,” *Journal Of The Optical Society Of America B-Optical Physics* **14**(11), 2811–2817 (1997).
- [47] L. Menager, I. Lorgere, and J. L. Le Gouet, “Fresnel diffraction on the edge of causality,” *Optics Letters* **25**(18), 1316–1318 (2000).
- [48] A. V. Alekseev and N. V. Sushilov, “Analytic solutions of Bloch and Maxwell-Bloch equations in the case of arbitrary field amplitude and phase modulation,” *Physical Review A* **46**(1), 351–55 (1992).
- [49] B. Cagnac and J.-P. Faroux, *Lasers, Interaction lumière-atomes* (EDP Sciences, CNRS Editions, Paris, 2002).

- [50] T. W. Barnard, “ $2n\pi$  Ultrashort Light Pulses,” *Physical Review A* **3**(1), 373–376 (1973).
- [51] G. L. J. Lamb, “Phase variation coherent-optical-pulse propagation,” *Physical Review Letters* **31**(4), 196–99 (1973).
- [52] R. T. Deck and G. L. J. Lamb, “Phase variation coherent-optical-pulse propagation,” *Physical Review A* **12**(4), 1503–11 (1975).
- [53] M. Matusovsky, B. Vaynberg, and M. Rosenbluh, “High Intensity Pulse Propagation in the Extreme Sharp-Line Limit,” *Physical Review Letters* **77**(26), 5198–5201 (1996).
- [54] M. Abramowitz and I. Stegun, *Handbook of mathematical functions with formulas, graphs, and mathematical tables* (National bureau of standards, 1964).
- [55] I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik, *Table of integrals, series, and products* (Academic Press, 1965-1980).
- [56] M. A. Bouchene, A. Debarre, J. C. Keller, J. L. Le Gouet, and P. Tchenio, “Observation of  $0\pi$ -pulse formation with incoherent light,” *Journal of the Optical Society of America B (Optical Physics)* **9**(2), 281–9 (1992).
- [57] J. Degert, W. Wohlleben, B. Chatel, M. Motzkus, and B. Girard, “Realization of a time-domain Fresnel lens with coherent control,” *Physical Review Letters* **89**(20) (2002).
- [58] J. Arlt, C. Weiss, G. Torosyan, and R. Beigang, “Coherent pulse propagation and the dynamics of Rydberg wave packets,” *Physical Review Letters* **79**(24), 4774–7 (1997).
- [59] S. Zamith, “Dynamique femtoseconde dans des atomes et molécules : précession de spin et dynamique de photoélectrons, transitoires cohérents, dynamique des états excités de l’acétylène,” Thèse d’université, Univ. P. Sabatier (2001).
- [60] J. Degert, “Manipulation cohérente d’atomes et de molécules diatomiques avec des impulsions mises en forme,” Thesis, Univ. P. Sabatier (2002).
- [61] W. Rudolph and B. Wilhelmi, *Light Pulse Compression* (Harwood Academic Publishers, 1989).
- [62] J. E. Rothenberg, “Self-Induced heterodyne : the interaction of a frequency-swept pulse with a resonant system,” *I.E.E.E. Journal of Quantum Electronics* **QE-22**(1), 174 (1986).
- [63] N. Belabas, J. P. Likforman, L. Canioni, B. Bousquet, and M. Joffre, “Coherent broadband pulse shaping in the mid infrared,” *Optics Letters* **26**(10), 743–5 (2001).
- [64] Y. B. Band and O. Magnes, “Adiabatic passage of population with temporally delayed chirped pulses,” *Nonlinear Optics, Principles, Materials, Phenomena and Devices* **11**(1-4), 167–79 (1995).
- [65] I. Walmsley, L. Waxer, and C. Dorrer, “The role of dispersion in ultrafast optics,” *Review Of Scientific Instruments* **72**(1), 1–29 (2001).
- [66] A. Shirakawa, I. Sakane, M. Takasaka, and T. Kobayashi, “Sub-5-fs visible pulse generation by pulse-front-matched noncollinear optical parametric amplification,” *Applied Physics Letters* **74**(16), 2268–70 (1999).



- [67] J. Hebling, E. J. Mayer, J. Kuhl, and R. Szipocs, "Chirped-mirror dispersion-compensated femtosecond optical parametric oscillator," *Optics Letters* **20**(8), 919 (1995).
- [68] D. J. Kane, "Recent progress toward real-time measurement of ultrashort laser pulses," *IEEE Journal of Quantum Electronics* **35**(4), 421 (1999).
- [69] A. Efimov, M. D. Moores, B. Mei, J. L. Krause, C. W. Siders, and D. H. Reitze, "Minimization of dispersion in an ultrafast chirped pulse amplifier using adaptive learning," *Applied Physics B* **70**(June), S133–41 (2000).
- [70] J. L. White, B. J. Pearson, and P. H. Bucksbaum, "Extracting quantum dynamics from genetic learning algorithms through principal control analysis," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics* (24), L399 (2004).
- [71] B. J. Pearson, J. L. White, T. C. Weinacht, and P. H. Bucksbaum, "Coherent control using adaptive learning algorithms," *Physical Review A* **63**, 063412 (2001).
- [72] Y. Yamaoka, L. Zeng, K. Minoshima, and H. Matsumoto, "Measurements and Numerical Analysis for Femtosecond Pulse Deformations After Propagation of Hundreds of Meters in Air with Water-Vapor Absorption Lines," *Applied Optics* **43**(29), 5523 (2004).
- [73] P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wedekind, H. Wille, L. Woste, and C. Ziener, "Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses," *Applied Physics B-Lasers And Optics* **71**(4), 573–580 (2000).
- [74] J. K. Ranka, R. W. Schirmer, and A. L. Gaeta, "Coherent spectroscopic effects in the propagation of ultrashort pulses through a two-level system," *Physical Review A* **57**(1), R36–R39 (1998).
- [75] A. Efimov, M. D. Moores, N. M. Beach, J. L. Krause, and D. H. Reitze, "Adaptive control of pulse phase in a chirped-pulse amplifier," *Optics Letters* **23**(24), 1915–1917 (1998).
- [76] V. Bagnoud and F. Salin, "Amplifying laser pulses to the terawatt level at a 1-kilohertz repetition rate," *Applied Physics B-Lasers And Optics* **70**, S165–S170 (2000).
- [77] P. R. Berman, L. X. Yan, K. H. Chiam, and R. W. Sung, "Nonadiabatic transitions in a two-level quantum system : Pulse-shape dependence of the transition probability for a two-level atom driven by a pulsed radiation field," *Physical Review A* **57**(1), 79–92 (1998).
- [78] B. Macke and P. Glorieux, "Transient Stark effects on a microwave line," *Chemical Physics Letters* **14**(1), 85–88 (1972).
- [79] V. Chaltykyan, G. Grigoryan, and G. Nikogosyan, "Dark-state evolution and self-phase modulation in a Lambda medium," *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **68**(1), 013819 (2003).
- [80] G. G. Grigoryan and Y. T. Pashayan, "Propagation of pulses in a three-level medium at exact two-photon resonance," *Physical Review A* **64**01(1), 013816 (2001).
- [81] S. Wielandy and A. L. Gaeta, "Coherent control of the polarization of an optical field," *Physical Review Letters* **81**(16), 3359–62 (1998).

- [82] R. Buffa, S. Cavalieri, and M. V. Tognetti, “Coherent control of temporal pulse shaping by electromagnetically induced transparency,” *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **69**(3), 033815–4 (2004).
- [83] T. W. Schmidt and G. Roberts, “ $E$ -field dependence of the ac Stark effect probed by a bichromatic laser field,” *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics* **35**(10), 2357–2367 (2002).
- [84] S. Wilkinson, A. V. Smith, M. O. Scully, and E. Fry, “Observation of interference fringes in Autler-Townes line shapes,” *Physical Review A* **53**(1), 126–9 (1996).
- [85] P. Balling, D. J. Maas, and L. D. Noordam, “Interference in climbing a quantum ladder system with frequency-chirped laser pulses,” *Physical Review A* **50**(5), 4276–85 (1994).
- [86] R. R. Jones, C. S. Raman, D. W. Schumacher, and P. H. Bucksbaum, “Ramsey interference in strongly driven Rydberg systems,” *Physical Review Letters* **71**(16), 2575–8 (1993).
- [87] M. Spanner, M. Ivanov, V. P. Kalosha, J. Hermann, D. A. Wiersma, and M. S. Pshenichnikov, “Tunable optimal compression of ultrabroadband pulses by cross-phase modulation,” *Optics Letters* **28**(9), 749–751 (2003).
- [88] B. R. Mollow, “Stimulated emission and absorption near resonance for driven systems,” *Physical Review A* **5**(5), 2217–22 (1972).
- [89] P. L. Knight and P. W. Milonni, “The Rabi frequency in optical spectra,” *Physics Reports* **66**(2), 21 (1980).
- [90] R. W. Boyd, M. G. Raymer, P. Narum, and D. J. Harter, “Four-wave parametric interactions in a strongly driven two-level system,” *Physical Review A* **24**(1), 411–423 (1981).
- [91] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, Paris, 1992).
- [92] G. Grynberg and C. Cohen-Tannoudji, “Central resonance of the Mollow absorption spectrum : physical origin of gain without population inversion,” *Optics Communications* **96**(1-3), 150 (1993).
- [93] J. C. Delagnes and M. A. Bouchene, “Effect of a transient light shift on the propagation of an ultrashort pulse in a resonant atomic medium,” *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **69**(6), 063813 (2004).
- [94] D. H. Yu, J. H. Lee, and J. S. Chang, “Theory of forward degenerate four-wave mixing in two-level saturable absorbers,” *Journal Of The Optical Society Of America B-Optical Physics* **16**(8), 1261–1268 (1999).
- [95] V. S. Egorov, V. N. Lebedev, I. B. Mekhov, P. V. Moroshkin, I. A. Chekhonin, and S. N. Bagayev, “Coherent interaction of laser pulses in a resonant optically dense extended medium under the regime of strong field-matter coupling,” *Physical Review A* **69**(3) (2004).
- [96] C. Nicole, M. A. Bouchene, and B. Girard, “Dynamics and Interference of fine-structure wave packets created by strong ultrashort pulses,” *Journal of Modern Optics* **49**(1/2), 183–200 (2002).
- [97] J. A. Beswick, R. Lefebvre, and A. M. Plumejeau, “Excitation with Monochromatic

- Light of a Vibronically Broadened Molecular Band,” *The Journal of Chemical Physics* **56**(8), 4011–4019 (1972).
- [98] S. T. Wane, “Systématique de la photoionisation et de la recombinaison radiative dans les séquences isoélectroniques du potassium, du rubidium, du cuivre et de l’argent.” Thèse d’état, Paris-Sud (1988).
- [99] A. Messiah, *Mécanique Quantique*, vol. 2 (Dunod, Paris, 1964).
- [100] D. Maas, “Climbing Quantum Ladder Systems by Ultrashort Infrared Laser Pulses.” Thesis, Amsterdam (1997).
- [101] D. Maas, C. W. Rella, P. Antoine, E. S. Toma, and L. Noordam, “Population transfer via adiabatic passage in the rubidium quantum ladder system,” *Physical Review A* **59**(2), 1374–81 (1999).
- [102] E. L. Hahn, N. S. Shiren, and S. L. McCall, “Application of the area theorem to phonon echoes,” *Physics Letters A* **37**(3), 265 (1971).



Cette thèse présente l'étude théorique et expérimentale du contrôle des phénomènes de propagation cohérente d'impulsions ultracourtes dans un milieu résonant optiquement dense. Dans une première partie, nous décrivons les phénomènes élémentaires des effets de propagation. L'épaisseur optique caractérise l'importance de la distorsion temporelle qui apparaît en général sur l'impulsion. A l'image des compensateurs à prismes ou à réseaux utilisés pour compenser la dispersion d'un milieu transparent, on montre que cette dispersion résonante peut être compensée par l'utilisation d'un façonneur d'impulsion haute résolution. Dans un second temps, nous développons l'idée de contrôler par un champ fort, les propriétés transitoires d'une autre impulsion faible et résonante qui se propage simultanément dans le milieu. Le champ fort induit des modifications transitoires dans le milieu, qui se répercutent et modifient par rayonnement le champ de l'impulsion résonante qui se propage. Dans un système à trois niveaux en échelle, des modulations visibles sur le profil temporel, révèlent les déplacements lumineux induits de manière non résonante sur les deux états excités. Leur durée caractéristique est plus courte que celle de l'impulsion initiale : il y a un enrichissement du spectre transmis. Ces oscillations résultent du battement entre le champ incident et le champ rayonné dont la fréquence varie sous l'effet des déplacements lumineux. L'excitation "bichromatique" d'un système à deux niveaux, présente deux configurations géométriques qui donnent accès à des informations différentes. En plus des phénomènes précédents qui apparaissent en configuration non colinéaire, les effets des transitions non adiabatiques induites par le champ de contrôle se manifestent également dans le cas colinéaire. Le champ faible est alors une sonde particulièrement sensible à ces effets. Nous étudions enfin une configuration où les deux impulsions, polarisées orthogonalement, excitent de manière résonante un système à quatre niveaux dégénérés deux à deux. Puisque le champ fort mélange les états, les chemins d'émission et d'absorption du champ faible ont des poids équivalents. Ces deux chemins interfèrent modulant ainsi l'énergie de l'impulsion transmise. La combinaison des déplacements lumineux et de ces interférences, permet de contrôler aussi bien le gain que la forme temporelle de l'impulsion.

**Mots clés :** Impulsions à dérive de fréquence, Transitoires cohérents, Mise en forme d'impulsion, Interférences de chemins quantiques, Propagation cohérente, Milieu optiquement dense, Oscillations de Rabi, Franges de Ramsey

---

The topic of this work deals with theoretical and experimental study of the control of ultrashort pulse coherent propagation in optically dense medium. First, we describe the basics of propagation phenomena. The optical thickness characterizes the importance of the temporal distortion of the pulse profile. As prisms or gratings compressors are used to cancel the dispersion of transparent medium, we show that a high resolution pulse shaper can compensate for the resonant dispersion. Secondly, we study the idea of using a strong driving pulse, to control the transient properties of a weak resonant pulse simultaneously propagating in the medium. The strong field induces transient modifications in the medium, that modify via radiation the electric field of the weak resonant propagating pulse. In a three level ladder system, modulations appear on the intensity profile, and reveal the light shift induced (off resonance) on the two upper levels. Their characteristic duration is shorter than the initial pulse duration : new components thus appear on the transmitted spectrum. These oscillations are the consequence of the beating between the incident and the radiated field whose frequency sweeps in time, following the light shift. In the bichromatic excitation of a two level system, two spatial configurations give access to different information. Besides the previous phenomena appearing in non collinear geometry, the non adiabatic transitions induced by the driving field are also involved in collinear interaction. A weak pulse can be used as a very sensitive probe to these effects. Finally, we study a configuration where two orthogonally polarized pulses, excite resonantly a four level system degenerated two by two. With the strong field mixing the states, the emission and absorption path of the weak field have similar contribution. The two paths interfere thus modulating the transmitted pulse energy. The interplay of the light shift and the interference, enables us to control the gain and the pulse temporal shape as well.

**Keywords :** Chirped pulses, Coherent transients, Pulse shaping, Quantum path interferences, Coherent pulse propagation, Optically dense medium, Rabi oscillations, Ramsey fringes