



HAL
open science

Stocker et restituer un photon unique

Jérôme Ruggiero

► **To cite this version:**

Jérôme Ruggiero. Stocker et restituer un photon unique. Physique Atomique [physics.atom-ph].
Université Paris Sud - Paris XI, 2010. Français. NNT: . tel-00551521

HAL Id: tel-00551521

<https://theses.hal.science/tel-00551521>

Submitted on 4 Jan 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PARIS-XI
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ PARIS-XI

par

JÉRÔME RUGGIERO

Stocker et restituer un photon unique

Soutenue le 12 novembre 2010 devant la commission d'examen composée de :

M. Daniel BLOCH	Rapporteur
Mme Sara DUCCI	Rapporteur
M. Philippe GOLDNER	Examineur
M. Jean-Louis LE GOUËT	Directeur de thèse
M. Loïc MORVAN	Examineur

Laboratoire Aimé Cotton - Campus scientifique d'Orsay

A mon père

Remerciements

A tout seigneur tout honneur, je tiens tout d'abord à remercier le directeur du Laboratoire Aimé Cotton, M. Pierre Pillet, pour m'avoir permis d'effectuer ma thèse au sein de son établissement.

Je remercie tout particulièrement mon Directeur de Thèse, Jean-Louis Le Gouët, pour m'avoir accueilli dans l'équipe Optique et Matériaux pour le Traitement de l'Information, et pour m'avoir fait confiance. J'ai pu à d'innombrables reprises bénéficier de ses lumières (et de sa grande patience...) tant en matière de théorie que de savoir faire expérimental. Je me souviens encore de la discussion que nous avons eue avant de démarrer cette aventure au long cours, où je lui faisais part de mes doutes quant à mon profil :

"Le sujet me motive beaucoup, mais j'ai aussi beaucoup de retard à rattraper, vu que je n'ai pas suivi le M2 Laser et Matière. Vous pensez que ça va me ralentir pour le démarrage de la thèse ?

- Ah non mais il n'y a aucun problème pour ça. De toute façon, quel que soit le Master 2 qu'on a fait, quand on arrive en thèse, on ne sait rien! "

Cette réplique bien sentie a fini de me rassurer et m'a permis de me lancer le coeur plus léger! Elle fut cependant suivie d'un commentaire qui eut pour moi des allures de mise en garde :

"'En revanche, vous allez travailler avec Thierry, et je dois vous prévenir qu'il va vite. Très vite même; il a réussi à monter la manip' d'écho de photons en à peine six mois en partant de rien.

- Ah oui quand même... Mais au moins ce sera stimulant pour moi!"

Ce ne fût pas suffisant pour me dissuader! Mais c'était sans aucun doute une fine analyse des capacités de mon cher Co-directeur de Thèse, Thierry Chanelière. Ses capacités d'analyse et son savoir-faire expérimental tout-terrain nous ont tiré de bien des faux-pas durant ma première année de thèse. Je le remercie pour sa disponibilité et sa gestion sans faille du projet scientifique que nous avons en commun. Même un ampli laser fonctionnant à 10% de son gain nominal n'a pas eu raison de sa persévérance, et nous a

permis de mener à bien les expériences d'écho à deux impulsions ! Il restera longtemps pour moi un modèle de rigueur scientifique.

Je remercie également celui qui comme moi appartient à la première génération de la "fine équipe" des thésards du groupe, à savoir Romain Lauro. Digne successeur d'Anne Louchet sur l'ex-manip' d'EIT dans le Tm :YAG, il était toujours partant pour des discussions fructueuses sur les points délicats de la physique liés à nos sujets respectifs. Je garde aussi un bon souvenir de CLEO 2009 à Baltimore où nous nous sommes rendus (avec la très sympathique Thu-Hien), ainsi que de la petite virée à New-York City (!) qui suivit (sans Thu-Hien cette fois). Ce souvenir reste néanmoins entaché de l'annonce de la disparition d'Ivan Lorgeré, pour lequel j'ai une pensée émue. Je souhaite à Romain la plus grande réussite pour son post-doc au CEA.

Il est temps de saluer les autres membres de la fine équipe. Seul représentant de la deuxième génération, Vianney Damon a incontestablement contribué à une certaine bonne humeur dans le groupe. Je lui souhaite tout le courage dont il aura besoin pour la redoutable épreuve de la rédaction qui l'attend. En écrivant ces lignes je me souviens des deux sessions de séminaire à Perreuse (2007 et 2008) auxquelles j'ai eu la chance de participer. Romain et Vianney gardent certainement comme moi un souvenir particulier de la seconde nuit au Top Ten, qui était en fait la raison officieuse de cette "retraite spirituelle" ! Un trophée fièrement accroché au dessus de la table de manip' "Echos" est là pour en témoigner.

Je salue évidemment Matthieu Bonarota, digne représentant de la troisième génération de la fine équipe, et mon successeur sur la manip' d'échos. J'espère l'avoir convaincu que le Mandel & Wolf est effectivement une saine lecture (private joke). J'ai beaucoup apprécié de travailler avec lui dans la bonne humeur durant ma dernière année de thèse. J'ai bénéficié de ses connaissances fraîchement acquises sur l'AFC au moment de retourner travailler avec Thierry, après la "parenthèse de l'Hélium". Je le remercie également pour ses renseignements sur la prépa agreg (même si... j'ai changé d'avis), et pour l'invitation à la Bresse en mars 2010 (même si... j'ai passé plus de temps sur les fesses que sur mes skis !)

La troisième génération de la fine équipe "étendue" compte aussi dans ses rangs Thomas Lauprêtre, que je salue, et que je félicite pour son organisation de la FLAC 2010 ! Son arrivée sur la manip' Hélium métastable a sans aucun doute soulagé Fabienne Goldfarb. Je remercie d'ailleurs cette dernière pour m'avoir encadré durant mon passage (ladite parenthèse de l'Hélium) sur la manip' afin de tester les changements de base en EIT. Je remercie également Fabien Bretenaker, appelé désormais aux plus hautes responsabilités au LAC, pour m'avoir apporté ses lumières sur le sujet. Je le salue

également pour m'avoir aidé à m'initier à ma nouvelle passion (la guitare basse!) dans des conditions optimales : un petit groupe de musiciens amateurs ! Une pensée au passage pour Guillaume Gorju (guitariste rythmique), plus tard remplacé par Mehdi Alouini (ah, les répèts dans les salles de Thalès...), et les choristes d'un jour (ou deux) Stéphanie Molin et Ghaya Baili.

Tant que j'y suis dans la nostalgie musicale, je me remémore avec plaisir les sessions qui suivirent, avec les talentueux Matthieu(x) (Bonarota, déjà cité, et Loumaigne, que je salue), tout deux guitaristes. Nous fumes très rapidement rejoints à la batterie (électronique) par celui qui ne peut pas me faire tarir d'éloges, j'ai nommé Manabendra Nath Bera (Manu pour les intimes).

Je remercie donc infiniment Manu, qui appartient à cette catégorie de gens qu'on croise une poignée de fois de sa vie. Non content d'avoir redynamisé les relations entre thésards dans le laboratoire par son inépuisable bonne humeur communicative, il a été pour moi un ami sans faille depuis que nos routes se sont croisées, quelques mois après le début de ma thèse. Son enthousiasme a toujours été un exemple pour moi quand le découragement me guettait. Nous avons à plusieurs reprises constaté qu'en dépit des résultats de la mécanique quantique, Einstein avait raison et que "God doesn't play dice" !(private joke). Par dessus tout, je le remercie pour son hospitalité indéfectible qui m'a au passage permis de découvrir la Maison de l'Inde et la Cité Universitaire de Paris dans son ensemble.

Cerise sur le gâteau, je lui dois la rencontre, à l'occasion de la fête des lumières (Diwali) un soir d'octobre 2009, de celle qui partage désormais ma vie, ma chère et tendre Rozewinde. For all this and all I forgot, thank you again Yaar !

A ce stade, je m'aperçois que je n'ai toujours pas salué celui qui commença sa thèse le même jour que moi, dans le même bureau, et qui ne tarda pas à devenir mon ami, j'ai nommé Mehdi-Hyper-Ayouz ! Je me souviens des parties de tennis de 50 mins écourtées un peu partout dans Paris, rituel qui s'est hélas fini trop tôt. Son énergie inépuisable et son amour de la physique furent assez communicatifs. Je lui souhaite de cartonner pour son post-doc outre-Atlantique.

Je salue évidemment Robert-Christopher, mieux connu sous le diminutif Bobby, et digne représentant de la quatrième génération de la fine équipe. Une nouvelle recrue de choc, qui a été formée à l'école DQN. Il a la lourde tâche de succéder au Dr. Lauro, mais je suis sûr qu'il saura relever le défi, aidé de Maria Florencia, que je salue aussi au passage. Je ne saurai oublier celui qui a dû subir mes nombreuses variations d'humeur durant la rédaction, puisqu'il fut mon vis-à-vis dans l'aquarium, j'ai nommé Guillaume Mondet. Je lui souhaite tout le succès possible.

Je salue aussi (il était temps !) la touche féminine parmi les thésards du labo, en les

personnes d'Anne Cournol et Leïla Kime. Elles ont contribué à la bonne ambiance du laboratoire, et Anne plus particulièrement à celle de l'aquarium (en duo avec Mehdi et ma modeste participation). Je leur souhaite bon courage alors que la rédaction approche pour elles. Une pensée également pour Christophe Azera, camarade de (trop) courte durée qui dut partir faire sa thèse à Bordeaux. Il est certainement la seule personne au monde à avoir aperçu une aurore boréale au dessus du LAC du Mail, un soir d'ennui à Orsay.

Je présente mes excuses aux gens que j'ai oubliés, et salue au passage Vincent et Oussama, ainsi que Paul. Parmi les "anciens", que je rejoins désormais, je salue Michael Mestre (compagnon de concert pour Radiohead 2008), Dimitris et Rachidi. Je n'oublie évidemment pas Sylvie, supplément d'âme et mémoire vivante du LAC! Je remercie également les ateliers mécanique et électronique pour leur aide précieuse.

En dehors des gens que j'ai eu la chance de rencontrer durant ma thèse au LAC, je remercie Alejandro pour son amitié indéfectible, et mon entourage proche (merci maman!) Une pensée pour Pauline qui poursuit sa quête éffrénée du boson de Higgs outre-Manche. Toujours en vrac, je salue également mes camarades Improsteurs du centre Daviel, dont une partie a remplié pour la saison 2.

Merci enfin à ma Rozeke de m'avoir fait une place dans sa vie.

Citations

Tu seras un homme (If)

*Si tu peux voir détruit l'ouvrage de ta vie,
Et sans dire un seul mot te mettre à rebâtir,
Ou perdre en un seul coup le gain de cent parties
Sans un geste et sans un soupir ;*

*Si tu peux être amant sans être fou d'amour,
Si tu peux être fort sans cesser d'être tendre,
Et, te sentant haï, sans haïr à ton tour
Pourtant lutter et te défendre ;*

*Si tu peux supporter d'entendre tes paroles
Travesties par des gueux pour exciter des sots ;
Et d'entendre mentir sur toi leurs bouches folles
Sans mentir toi-même d'un mot ;*

*Si tu peux rester digne en étant populaire,
Si tu peux rester peuple en conseillant les rois,
Et si tu peux aimer tous tes amis en frère
Sans qu'aucun d'eux soit tout pour toi ;*

*Si tu sais méditer, observer et connaître,
Sans jamais devenir sceptique ou destructeur ;
Rêver, mais sans laisser ton rêve être ton maître,
Penser sans n'être qu'un penseur ;*

*Si tu peux être dur sans jamais être en rage,
Si tu peux être brave et jamais imprudent,*

*Si tu sais être bon, si tu sais être sage,
Sans être moral ni pédant ;*

*Si tu peux rencontrer Triomphe après Défaite
Et recevoir ces deux menteurs d'un même front,
Si tu peux conserver ton courage et ta tête
Quand tous les autres les perdront,*

*Alors les Rois, les Dieux, la Chance et la Victoire
Seront à tout jamais tes esclaves soumis,
Et, ce qui vaut mieux que les Rois et la Gloire,
Tu seras un homme, mon fils.*

Rudyard Kipling, in *Rewards and Fairies*, 1910 (trad. A. Maurois, 1918).

-Do not worry about your problems with mathematics, I assure you mine are far greater.

-God does not care about our mathematical difficulties. He integrates empirically.
Albert Einstein.

La bêtise insiste toujours (Camus, in *La Peste*, 1947)

Il y a seulement de la malchance à n'être pas aimé ; il y a du malheur à ne point aimer. (Camus)

Soyez résolu à ne plus servir, et vous voilà libres (La Boetie)

Il est toujours aisé d'être logique. Il est presque impossible d'être logique jusqu'au bout. (Camus)

Rien au monde ne vaut qu'on se détourne de ce qu'on aime. (Camus)

Mal nommer les choses, c'est ajouter au malheur du monde. (Camus)

Parler de ce qu'on ignore finit par vous l'apprendre. (Camus)

L'élève, comme la rivière, aimerait suivre son cours tout en restant dans son lit... (Camus)

Le bonheur est la plus grande des conquêtes, celle qu'on fait contre le destin qui nous est imposé. (Camus)

Tout accomplissement est une servitude. Il oblige à un accomplissement plus haut. (Camus)

En vérité, le chemin importe peu, la volonté d'arriver suffit à tout. (Camus)

Il n'y a pas d'amour de vivre sans désespoir de vivre. (Camus)

Table des matières

Notations utilisées	15
Introduction générale	17
1 Echo de photon à 2 impulsions	21
1.1 Introduction	21
1.2 Excitation cohérente et réponse radiative	22
1.2.1 Excitation des atomes : équations de Bloch optiques	22
1.2.2 Polarisation macroscopique et réponse radiative	25
1.3 Remise en phase des atomes : écho de photon	27
1.3.1 Remise en phase par une impulsion π	27
1.3.2 Généralisation à une impulsion d'aire quelconque	28
1.3.3 Formation du signal d'écho	29
1.4 Expression de l'écho à la sortie de l'échantillon	31
1.4.1 Propagation de l'impulsion de remise en phase, théorème de l'aire	31
1.4.2 Résolution de l'équation de l'écho	33
1.5 Echo de photon et mémoire quantique	36
2 Expériences d'Echo à 2 impulsions	39
2.1 Introduction	39
2.2 Système physique	40
2.3 Dispositif expérimental	43
2.4 Réglages, calibration	47
2.4.1 Nutation optique et fréquence de Rabi	47
2.4.2 Nutation optique et orientation du cristal	48
2.4.3 Saturation et mesure de l'opacité	50
2.4.4 Calibration	51
2.5 Expérience et discussion	51
2.5.1 Résultats expérimentaux	51
2.5.2 Discussion	52

TABLE DES MATIÈRES

2.6	Conclusion	55
3	Dépasser les limites de l'écho à deux impulsions : protocoles sans impulsion de rephasage	57
3.1	Introduction	57
3.2	Inverser la phase Doppler sans exciter la transition de stockage	58
3.3	Contrôle de l'élargissement inhomogène optique par effet Stark	61
3.3.1	Principe de la remise en phase par effet Stark	61
3.3.2	Temps de stockage, bande passante, opacité et modes spectro-temporels	63
3.3.3	Réalisations expérimentales	64
3.4	Peigne de fréquence atomique (<i>Atomic Frequency Comb</i>)	65
3.4.1	Echo de photon accumulé et peigne de fréquence	65
3.4.2	Propagation vers l'avant à travers un filtre périodique	66
3.4.3	Temps de stockage, bande passante, opacité et modes spectro-temporels	69
3.5	Conclusion	70
4	Expériences d'écho AFC	75
4.1	Introduction	75
4.2	Montage expérimental	77
4.2.1	Réalisation du champ magnétique	77
4.2.2	Montage optique	79
4.2.3	Séquence de temps	80
4.3	Résultats expérimentaux	82
4.3.1	Orientation du cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ dans le champ magnétique	83
4.3.2	Observation du peigne et de l'écho AFC	83
4.3.3	Optimisation de l'amplitude du champ magnétique	85
4.4	Analyse et discussion	86
4.4.1	Analyse des résultats	86
4.4.2	Modélisation de l'efficacité du peigne AFC	88
4.5	Conclusion - Discussion	91
	Conclusion générale	93
A	Pompage d'un peigne AFC par des paires d'impulsions - Spectre de pompe sinusoïdal	97
A.1	Introduction	97
A.2	Pompage périodique résonnant d'un système à trois niveaux	98

TABLE DES MATIÈRES

A.3	Pompage par un spectre sinusoïdal	100
A.4	Effets de la largeur homogène sur le peigne	102
B	Article sur la propagation cohérente des impulsions fortes	105
C	Article sur $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ envisagé comme matériau mémoire	113
D	Article sur les échos de photon à deux impulsions envisagés comme protocole de stockage	121

TABLE DES MATIÈRES

Notations utilisées

Nous choisissons dans tout le corps du texte les notations suivantes :

$\omega_{ab}/(2\pi)$ = fréquence de transition entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$

$\omega_L/(2\pi)$ = fréquence du laser excitant la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$

ρ_{ij} = élément de la matrice densité associé au projecteur $|i\rangle\langle j|$

$\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) = \rho_{ab}(\Delta, z, t)e^{i(kz - \omega_L t)}$

γ_b = taux de relaxation du niveau excité $|b\rangle$

γ_{ab} = taux de relaxation de la cohérence optique ρ_{ab} = largeur du profil homogène de la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$

Γ_{ih} = largeur à $1/e$ du profil inhomogène de la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$

$\mathcal{E}(z, t)$ = amplitude réelle du champ électrique $E(z, t)$

$\Omega(z, t)$ = fréquence de Rabi de l'impulsion signal

$\Omega_R(z, t)$ = fréquence de Rabi de l'impulsion de rephasage

μ_{ab} = moment de transition dipolaire électrique

$$\vec{\mathcal{B}}(\Delta, z, t) = \begin{pmatrix} u(\Delta, z, t) \\ v(\Delta, z, t) \\ w(\Delta, z, t) \end{pmatrix} = \text{vecteur de Bloch}$$

$P(z, t)$ = densité macroscopique de polarisation

$g(\Delta)$ = distribution des atomes en fonction de leur fréquence de transition

n = densité volumique des centres absorbants

$\alpha = \pi g(0)\mu_{ab}^2\omega_L c/\hbar$: coefficient d'absorption

L = longueur du milieu absorbant dans la direction de propagation du champ

$b_0 = \alpha_0 L$: opacité (initiale) du milieu absorbant

τ_R = durée de l'impulsion de rephasage

τ_S = durée de l'impulsion de signal

$A = \int \Omega(0, t)dt$ = aire de l'impulsion de signal (en rad)

$A_R(z) = \int \Omega_R(z, t)dt$ = aire de l'impulsion de rephasage au point z (en rad)

$\Omega_E(z, t)$ = fréquence de Rabi de l'écho

$\eta_E(A_R(0), b)$ = efficacité de restitution en fonction de l'aire incidente de l'impulsion de rephasage et de l'opacité $b = \alpha L$ du milieu absorbant

Ω_0 = fréquence de Rabi sur l'axe du faisceau

$$\Omega_{eff} = \sqrt{\Omega_0^2 + \Delta^2}$$

$L_P(A_R(0))$ = Profondeur de pénétration à 1/e (en amplitude) d'une impulsion de rephasage d'aire entrante valant $A_R(0)$

Introduction générale

Le sujet de ce mémoire de thèse s'inscrit dans le cadre très général de l'information quantique [1], et plus précisément dans celui des "mémoires quantiques". Ces dernières consistent à enregistrer puis restituer l'information portée par des photons, qui restent un support robuste et rapide dans un milieu matériel. Pour ce dernier, on privilégie des ensembles atomiques dont les perspectives sont prometteuses pour les communications quantiques [2]. Les ensembles ont l'avantage de la simplicité expérimentale par rapport aux particules uniques qui restent difficiles à isoler et contrôler. La complexité se retrouve plutôt dans la compréhension du matériau (*e.g.* inhomogénéité, désordre) et dans son interaction avec la lumière (*e.g.* propagation, effets collectifs [3], décohérence d'état macroscopique). Une telle richesse est en tous cas passionnante et nous permet de considérer une situation des plus fondamentales d'interaction matière-rayonnement.

Les enjeux du domaine peuvent aussi être vus dans leur aspect applicatif, avec par exemple l'élaboration de "répéteurs quantiques" pour la cryptographie quantique à longue distance [2]. La sécurité de ce procédé repose sur la sensibilité de l'information quantique à toute perturbation extérieure, qui la modifie irréversiblement. Cependant, les protocoles actuels de cryptographie quantique sont rendus inopérants à longue distance par l'atténuation du signal dans les fibres qui le transportent. La dégradation du rapport signal sur bruit les rend inefficaces, et il faut alors avoir recours à un répéteur quantique. Mais à l'inverse des répéteurs classiques, leurs analogues quantiques ne peuvent se permettre d'amplifier le signal. En effet, une telle amplification détériorerait un signal de nature quantique, en vertu du théorème de non-clonage [1]. Le fonctionnement des répéteurs quantiques repose donc sur l'intrication de mémoires quantiques de proche en proche. Ces segments mis bout à bout doivent permettre d'atteindre typiquement un millier de kilomètres [2]. Le temps qu'il faut à la lumière pour parcourir une telle distance permet de fixer l'objectif à atteindre pour la durée de stockage en mémoire, *i.e.* une dizaine de millisecondes. Dans le contexte plus général de l'information quantique, la mémoire pose la question de la conversion d'information d'un support (ici optique) à un autre (atomique).

Les premières expériences de stockage quantique ont naturellement impliqué les vapeurs atomiques (par exemple de rubidium), dont on connaît très bien la spectroscopie.

Les faibles interactions dans le gaz assurent un bon temps de cohérence, qui donne la limite ultime pour la durée de stockage. Le protocole phare est basé sur "transparence induite électromagnétiquement" (EIT) [4, 5, 6]. On adresse alors directement deux états fondamentaux dont la cohérence est longue. On "court-circuite" l'état excité de durée de vie plus courte dans une structure dite en Λ . Les expériences associées sont réalisées à température ambiante et restent limitées par le transit des atomes dans le faisceau ou les effets collisionnels. Une manière de s'en affranchir est d'utiliser une vapeur refroidie par laser, dans laquelle les atomes sont quasi-immobiles [7]. Ce type d'expérience s'avère néanmoins lourd à mettre en œuvre. Les solides cristallins sont donc une alternative adaptée puisque les centres dopants sont alors spatialement localisés.

Le laboratoire Aimé Cotton (LAC) possède une grande expérience sur les ions de terre-rare en matrice cristalline, comme le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ (ions thulium dans une matrice de YAG). Ces systèmes ont été historiquement utilisés pour le traitement optique de l'information classique [8]. Les techniques et protocoles mis en œuvre se basent sur des effets transitoires optiques cohérents dont l'archétype est "l'écho de photon" [9]. On exploite alors pleinement la longue durée de vie du niveau excité, qui est une caractéristique générale des solides dopés terre-rare. De longs temps de cohérence (plusieurs dizaines de microsecondes) peuvent effectivement être obtenus à température cryogénique, où les effets délétères des phonons sur le centre dopant sont négligeables.

Le point de départ de notre réflexion a été de nous demander si l'écho de photon peut être utilisé pour stocker de l'information quantique, comme il l'a été en régime classique dans ces cristaux. En un mot, peut-on voir l'écho d'un seul photon ?

Pour ces expériences, nous utilisons, en guise de signal à stocker, des impulsions laser fortement atténuées. Ainsi, même si elles ne contenaient en moyenne qu'un photon ou moins, la distribution statistique du nombre de photons reste classique (en l'occurrence poissonnienne), et non quantique (ou sub-poissonnienne) [10]. Elles ont l'énorme avantage d'être faciles à produire et permettent d'étudier le bruit dans un régime d'intensité au niveau du photon unique. La linéarité des interactions entre le champ et la matière nous assure un comportement similaire pour des champs "vraiment" non-classiques. On peut donc se contenter de montrer que le système atomique considéré restitue fidèlement l'amplitude du champ lumineux à stocker d'une part, ainsi que sa phase et son enveloppe d'autre part, ce qui correspond respectivement à l'efficacité et à la fidélité d'une mémoire quantique.

Le sujet de la thèse expérimentale présentée ici porte d'abord directement sur l'écho

de photon à deux impulsions, dont il est question aux premier et second chapitres. Nous passons en revue les limitations fondamentales qu'impose cette technique pour des champs quantiques ([11], présenté en annexe D). Cette conclusion est basée sur une étude expérimentale présentée au second chapitre.

Nous présentons ensuite des protocoles dérivés, comme les échos Stark (troisième chapitre) et les échos émis par un milieu d'absorption structurée en peigne de fréquence atomique ou échos AFC (troisième et quatrième chapitres). Ces deux protocoles, tout en étant largement inspirés par l'écho de photon, ne souffrent pas de ses limitations en régime quantique. Les résultats expérimentaux obtenus concernant les échos AFC au quatrième chapitre valident parfaitement cette approche.

Dans la continuité du stage de Master 1 que j'ai également effectué au LAC, cette thèse a aussi été l'occasion pour moi d'étudier expérimentalement l'EIT dans une vapeur d'Hélium métastable, et les effets d'un changement de base des états quantiques impliqués sur la largeur des pics EIT observés (voir [12, 13]).

Enfin, cette thèse s'inscrit aussi dans la continuité du stage de Master 2 que j'ai effectué dans le même groupe, et qui portait sur l'étude des échos de photon à trois impulsions en tant que mémoire quantique potentielle. J'avais pu alors optimiser le taux de réjection des impulsions de rephasage (fortes). Cette réjection est indispensable à la préservation d'un écho de quelques photons seulement. Elle fut un aspect technique majeur pour les expériences d'échos à deux impulsions présentées au deuxième chapitre. Elle nécessite par ailleurs de bien comprendre les phénomènes de propagation cohérente des impulsions fortes d'aire π (cf. chapitres 1 et 2) [3, 14].

Chapitre 1

Echo de photon à 2 impulsions

Sommaire

1.1	Introduction	21
1.2	Excitation cohérente et réponse radiative	22
1.2.1	Excitation des atomes : équations de Bloch optiques	22
1.2.2	Polarisation macroscopique et réponse radiative	25
1.3	Remise en phase des atomes : écho de photon	27
1.3.1	Remise en phase par une impulsion π	27
1.3.2	Généralisation à une impulsion d'aire quelconque	28
1.3.3	Formation du signal d'écho	29
1.4	Expression de l'écho à la sortie de l'échantillon	31
1.4.1	Propagation de l'impulsion de remise en phase, théorème de l'aire	31
1.4.2	Résolution de l'équation de l'écho	33
1.5	Echo de photon et mémoire quantique	36

1.1 Introduction

L'absorption d'une impulsion lumineuse par un ensemble d'atomes ne se réduit pas à un transfert d'énergie de la lumière vers la matière. Les propriétés spatiales et spectro-temporelles de l'impulsion s'inscrivent elles aussi dans le milieu matériel sous forme d'excitation atomique. Dès 1964, l'expérience [9] a montré que le milieu matériel pouvait restituer, avec un retard ajustable, un signal lumineux porteur des mêmes propriétés spatiales et spectro-temporelles que l'impulsion initiale. Ce processus, appelé écho de photon, nous sert de prototype de mémoire quantique.

Quelques remarques intuitives permettent de définir le cadre de l'étude. Tout d'abord, le signal initial doit complètement disparaître dans le milieu matériel afin d'être ensuite

restitué dans son intégralité. Toute fraction du signal qui traverserait le milieu serait perdue pour la mémoire. Cette condition impose au milieu d'être opaque et de présenter une bande d'absorption beaucoup plus large que le spectre du signal incident. Le milieu matériel sera constitué d'atomes à deux niveaux. L'information spatiale et spectro-temporelle est portée par des facteurs de phase que seuls des états de superposition atomiques pourront enregistrer. La durée de vie de la mémoire sera donc limitée par la relaxation des cohérences atomiques, c'est à dire par la largeur homogène de la transition optique entre les deux niveaux. Par ailleurs le temps de mémoire sera très supérieur à la durée du signal incident. La largeur homogène sera donc beaucoup plus petite que la largeur spectrale du signal incident. Des atomes tous dotés de la même fréquence de transition ne pourraient capturer ce spectre. Seul un élargissement inhomogène suffisant permettra de couvrir le spectre incident.

L'étude porte donc sur l'émission d'un écho de photon à partir d'un milieu de grande densité optique et d'élargissement inhomogène très supérieur à la largeur spectrale du signal incident, constitué d'atomes à deux niveaux. Dans une première étape nous examinons l'excitation des atomes et la propagation du signal incident dans le milieu matériel. Ce signal, composé de quelques photons, est décrit comme une onde semi-classique de faible intensité. La polarisation macroscopique induite dans l'ensemble atomique s'efface rapidement sous l'effet du déphasage inhomogène, alors même que les cohérences atomiques restent présentes. Dans une seconde étape, on remet en phase ces cohérences à l'aide d'une impulsion intense. La polarisation macroscopique renaît sous l'effet de la remise en phase des cohérences. Nous établissons l'équation d'onde qui exprime la reconstruction du signal à partir de la polarisation macroscopique. Utilisant le théorème de l'aire pour décrire la propagation de l'impulsion de rephasage dans un milieu optiquement épais, nous obtenons enfin l'expression théorique de l'efficacité de restitution du signal avant de conclure sur les limites du processus d'écho de photon envisagé comme un protocole de stockage quantique.

1.2 Excitation cohérente et réponse radiative

1.2.1 Excitation des atomes : équations de Bloch optiques

Le système matériel est décrit comme un ensemble d'atomes à deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$, reliés par une transition dipolaire électrique de fréquence ω_{ab} . Chaque atome interagit avec son environnement. On ne peut donc pas le représenter comme un système isolé dont l'état pur, superposition de $|a\rangle$ et $|b\rangle$, obéirait à l'équation de Schrödinger. Seul le système composé par l'atome et l'ensemble de l'univers qui l'entoure pourrait être décrit comme un état pur. Dans l'incapacité d'écrire un tel état, on a recours à la représenta-

tion de la matrice densité. L'état de chaque atome est représenté par une matrice densité réduite obtenue en effectuant la trace partielle de la matrice densité totale sur les états de l'environnement. L'état atomique est ainsi complètement défini par les populations ρ_{aa} et ρ_{bb} des niveaux atomiques et par l'élément non-diagonal ρ_{ab} , un nombre complexe appelé *cohérence atomique*, qui rend compte de la relation de phase entre les états $\langle a|$ et $\langle b|$. La trace partielle correspond à une moyenne statistique et se traduit par le caractère non-conservatif de l'équation de la matrice densité réduite. Le couplage avec l'environnement est donc simplement décrit par des taux de relaxation qui expriment, d'une part le dépeuplement du niveau supérieur $|b\rangle$ vers le niveau fondamental $|a\rangle$, d'autre part la destruction de la cohérence atomique. Nous les notons respectivement γ_b et γ_{ab} .

Dans la limite de l'approximation semi-classique, l'impulsion lumineuse incidente est définie comme une onde progressive électromagnétique classique de la forme :

$$E(z, t) = \mathcal{E}(z, t) \cos(\omega_L t - kz) \quad (1.1)$$

Le couplage dipolaire électrique des atomes et du champ est caractérisé par la fréquence de Rabi :

$$\Omega(z, t) = \mu_{ab} \mathcal{E}(z, t) / \hbar \quad (1.2)$$

où μ_{ab} représente le moment de transition dipolaire. Dans l'approximation de l'onde tournante (ou RWA, voir [15]), l'équation de la matrice densité (réduite) d'un atome se met sous la forme de l'équation de Bloch optique :

$$\dot{\tilde{\rho}}_{ab}(\Delta, z, t) = \frac{i}{2} [\rho_{bb}(\Delta, z, t) - \rho_{aa}(\Delta, z, t)] \Omega(z, t) - (i\Delta + \gamma_{ab}) \tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) \quad (1.3a)$$

$$\dot{\rho}_{aa}(\Delta, z, t) = \frac{i}{2} [\tilde{\rho}_{ba}(\Delta, z, t) - \tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t)] \Omega(z, t) + \gamma_b \rho_{bb}(z, t) \quad (1.3b)$$

$$\dot{\rho}_{bb}(\Delta, z, t) = -\dot{\rho}_{aa}(\Delta, z, t) \quad (1.3c)$$

où $\Delta = \omega_L - \omega_{ab}$ et où on prend pour référence la phase temporelle et spatiale du laser par la transformation :

$$\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) = \rho_{ab}(\Delta, z, t) e^{-i\omega_L t + ikz}. \quad (1.4)$$

Compte tenu de la conservation de la population totale, l'équation de Bloch met en jeu trois quantités atomiques indépendantes : la différence de population des niveaux, ainsi que les parties réelle et imaginaire de la cohérence. Plus précisément, les variables :

$$\begin{aligned}
 u(\Delta, z, t) &= 2\text{Re}[\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t)] \\
 v(\Delta, z, t) &= 2\text{Im}[\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t)] \\
 w(\Delta, z, t) &= \rho_{bb}(\Delta, z, t) - \rho_{aa}(\Delta, z, t),
 \end{aligned} \tag{1.5}$$

constituent les composantes du *vecteur de Bloch* qui évolue dans un espace abstrait à 3 dimensions, obéissant à l'équation du mouvement obtenue par substitution de l'Eq. 1.5 dans l'Eq. 1.3 :

$$\dot{u}(\Delta, z, t) = \Delta v(\Delta, z, t) - \gamma_{ab}u(\Delta, z, t) \tag{1.6a}$$

$$\dot{v}(\Delta, z, t) = -\Delta u(\Delta, z, t) + \Omega(z, t)w(\Delta, z, t) - \gamma_{ab}v(\Delta, z, t) \tag{1.6b}$$

$$\dot{w}(\Delta, z, t) = -\Omega(z, t)v(\Delta, z, t) - \gamma_b(1 + w(\Delta, z, t)) \tag{1.6c}$$

Ces équations décrivent la précession du vecteur de Bloch autour du *vecteur de contrôle* de composantes $(\Omega(z, t), 0, \Delta)$. A résonance, lorsque $\Delta = 0$, le vecteur de Bloch tourne autour de l'axe Ou à la vitesse angulaire $\Omega(z, t)$. Toujours à résonance, l'angle parcouru par le vecteur de Bloch au cours d'une impulsion lumineuse est égal à l'aire $\int_{-\infty}^{\infty} \Omega(z, t') dt'$ de l'impulsion. Lorsque l'aire de l'impulsion est faible, le vecteur de Bloch s'écarte peu de sa direction initiale. En particulier, si l'atome se trouve initialement dans l'état fondamental, avec $w = -1$ et $u = v = 0$, la composante w est peu modifiée par le passage d'une impulsion d'aire $\ll 1$ et la valeur finale de la composante horizontale v est égale à l'aire de l'impulsion.

Pour traiter le cas plus général d'un désaccord Δ quelconque, nous résolvons formellement l'Eq. 1.3a en supposant les atomes initialement préparés dans le fondamental. L'aire de l'impulsion étant petite, on remplace $[\rho_{bb}(\Delta, z, t') - \rho_{aa}(\Delta, z, t')]$ par -1 et la cohérence s'écrit :

$$\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) = -\frac{i}{2} \int_{-\infty}^t \Omega(z, t') e^{-(i\Delta + \gamma_{ab})(t-t')} dt'. \tag{1.7}$$

Lorsqu'on se place à un instant t postérieur au passage de l'impulsion, on peut déplacer vers $+\infty$ la borne supérieure de l'intégrale dans l'Eq. 1.7. Supposant que l'impulsion est centrée en $t = t_1$ et que la relaxation de la cohérence est négligeable pendant la durée τ_s de l'impulsion, on obtient alors, à l'instant t tel que $t - t_1 \gg \tau_s$:

$$\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) = -\frac{i}{2} e^{-(i\Delta + \gamma_{ab})(t-t_1)} \tilde{\Omega}(z, \Delta). \tag{1.8}$$

où

$$\tilde{\Omega}(z, \Delta) = \int_{-\infty}^{\infty} \Omega(z, t') e^{-i\Delta(t_1 - t')} dt' \quad (1.9)$$

correspond à l'amplitude spectrale de la fréquence de Rabi. Cette expression décrit un processus d'assignation ("mapping") résonnant. Chaque composante spectrale du champ n'interagit qu'avec les atomes en résonance avec elle. Le champ inscrit son spectre d'amplitude dans la cohérence atomique, transmettant aux atomes une information d'intensité et de phase. Après excitation, la cohérence atomique s'efface progressivement avec le taux de relaxation γ_{ab} . Par ailleurs une phase $\Delta(t - t_1)$ se construit au fil du temps. Elle dépend de l'écart de la transition atomique avec la fréquence centrale de l'impulsion excitatrice.

Après avoir déterminé l'effet du champ incident sur les atomes, nous examinons maintenant leur réponse radiative.

1.2.2 Polarisation macroscopique et réponse radiative

La réponse radiative du milieu matériel est exprimée par l'équation d'onde, déduite des équations de Maxwell [15]. Dans l'hypothèse d'une onde progressive \mathcal{E} le long de Oz , l'équation d'onde s'écrit, dans l'approximation d'un champ scalaire :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{\partial^2 E}{c^2 \partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (1.10)$$

où P représente la densité macroscopique de polarisation. La polarisation apparaît dans le terme source d'une équation qui, sous forme homogène, sans second membre, décrirait simplement la propagation libre d'une onde progressive. L'équation de Bloch et l'équation d'onde correspondent à deux niveaux différents de la description du réel. Tandis que l'équation de Bloch rend compte de l'action du champ électromagnétique sur la matière à l'échelle atomique, l'équation de Maxwell exprime l'évolution du champ à l'échelle macroscopique, typiquement sur une distance très grande à l'échelle de l'atome. Ces deux niveaux de réalité se rejoignent dans la polarisation P , écrite comme la densité spatiale de dipôles atomiques. A partir des dipôles μ_i portés par les N atomes contenus dans un volume V de dimension petite, suivant Oz , par rapport à la longueur d'onde optique, on définit P sous la forme :

$$P(z, t) = \frac{1}{V} \text{Tr} \left[\rho \sum_{i=1}^N \mu_i \right] = \mu_{ab} \frac{1}{V} \sum_{i=1}^N \left[\rho_{ab}^{(i)} + \rho_{ba}^{(i)} \right]. \quad (1.11)$$

On suppose que les atomes sont répartis uniformément dans l'espace et que leur fréquence de transition est distribuée suivant la loi $g(\Delta)$, où $n = \int_{-\infty}^{\infty} g(\Delta) d\Delta$ représente la densité spatiale des atomes. La densité de polarisation macroscopique s'écrit alors :

$$P(z, t) = \mu_{ab} \int d\Delta g(\Delta) [\rho_{ab}(\Delta, z, t) + \rho_{ba}(\Delta, z, t)], \quad (1.12)$$

Substituant l'Eq. 1.7 dans l'Eq. 1.12 on obtient :

$$P(z, t) = -\frac{i}{2} \mu_{ab} e^{i\omega_L t - ikz} \int_{-\infty}^t dt' \Omega(z, t') e^{-\gamma_{ab}(t-t')} \int d\Delta g(\Delta) e^{-i\Delta(t-t')} + \text{c.c.}, \quad (1.13)$$

Pour capturer toute la lumière, les atomes, distribués suivant $g(\Delta)$, doivent couvrir tout le spectre de l'impulsion excitatrice. Nous supposons désormais que le spectre de cette impulsion est beaucoup plus étroit que $g(\Delta)$. Nous supposons aussi que la largeur homogène γ_{ab} est très inférieure à la largeur de $g(\Delta)$. On peut alors remplacer $\int d\Delta g(\Delta) e^{-i\Delta(t-t')}$ par $2\pi n \delta(t-t')$. La polarisation se réduit à :

$$P(z, t) = -\frac{i}{2} \pi n \mu_{ab} e^{i\omega_L t - ikz} \Omega(z, t) + \text{c.c.}, \quad (1.14)$$

Substituant l'Eq. 1.14 dans l'Eq. 1.10, on obtient, dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable (voir [15]) :

$$\frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{\partial z} + \frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{c \partial t} = -\frac{\alpha}{2} \mathcal{E}(z, t) \quad (1.15)$$

où :

$$\alpha = \pi n \mu_{ab}^2 \omega_L c / \hbar \quad (1.16)$$

La réponse atomique, synchrone de l'impulsion excitatrice et en opposition de phase avec elle, se traduit simplement par l'absorption de celle-ci avec le coefficient α . La solution s'écrit :

$$\mathcal{E}(z, t) = \mathcal{E}(0, t - z/c) e^{-\alpha z/2} \quad (1.17)$$

Selon les Eqs. 1.14 et 1.15, le milieu matériel répond instantanément à l'impulsion excitatrice. La polarisation macroscopique $P(z, t)$, naît, se développe et s'éteint en même temps que la lumière incidente. Pourtant, selon l'Eq. 1.8, la relaxation de l'excitation atomique à l'échelle microscopique est gouvernée par γ_{ab} . Elle peut subsister longtemps après l'extinction de l'impulsion lumineuse. La disparition instantanée de $P(z, t)$ résulte de l'interférence destructive des atomes de fréquences de transition différentes. Cependant la phase relative des atomes évolue de façon déterministe. Il suffit de remettre les atomes en phase pour faire renaître la polarisation macroscopique et la réponse radiative du milieu matériel.

1.3 Remise en phase des atomes : écho de photon

1.3.1 Remise en phase par une impulsion π

Le mécanisme de remise en phase se comprend bien dans la représentation du vecteur de Bloch. De l'Eq. 1.8, on déduit les composantes du vecteur de Bloch après excitation par l'impulsion initiale de faible intensité :

$$\vec{\mathcal{B}}(\Delta, z, t) = - \begin{pmatrix} \sin [\Delta(t - t_1) - \phi(z, \Delta)] \left| \tilde{\Omega}(z, \Delta) \right| e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \\ \cos [\Delta(t - t_1) - \phi(z, \Delta)] \left| \tilde{\Omega}(z, \Delta) \right| e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \\ 1 \end{pmatrix}.$$

où : $\phi(z, \Delta) = \arg [\tilde{\Omega}(z, \Delta)]$ Cette expression décrit la précession du vecteur de Bloch autour de l'axe vertical Ow à la vitesse Δ à partir de l'instant t_1 .

A l'instant t_2 on applique une brève impulsion lumineuse, de même fréquence centrale et de même vecteur d'onde que l'impulsion initiale. Ces hypothèses sont importantes. Elles nous permettent de conserver, pour décrire l'évolution du système atomique, les références de phase déjà utilisées dans l'Eq. 1.4. On suppose que la durée τ_R de la seconde impulsion est beaucoup plus petite que τ_s , inverse de la largeur du domaine spectral sélectionné par l'impulsion initiale. Le vecteur de Bloch n'a donc pas le temps de tourner autour de l'axe vertical pendant la durée de la seconde impulsion. Son mouvement se réduit à une rotation autour de l'axe horizontal Ou . Il parcourt un angle égal à l'aire de l'impulsion. Dans l'hypothèse d'une aire égale à π , la composante $u(\Delta, z, t_2)$ reste inchangée, tandis que le signe des composantes $v(\Delta, z, t_2)$ et $w(\Delta, z, t_2)$ est inversé. Cette transformation est représentée par la matrice :

$$R_u(\pi) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (1.18)$$

Après le passage de cette impulsion intense, le vecteur de Bloch reprend son mouvement de rotation autour de l'axe vertical à la vitesse Δ , décrit par la matrice :

$$R_w[\Delta(t - t_2)] = \begin{pmatrix} \cos [\Delta(t - t_2)] & \sin [\Delta(t - t_2)] & 0 \\ -\sin [\Delta(t - t_2)] & \cos [\Delta(t - t_2)] & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad (1.19)$$

En fonction de son expression $\vec{\mathcal{B}}(\Delta, z, t_2^{(-)})$, juste avant l'impulsion π , le vecteur de Bloch devient :

$$\begin{aligned}
 \vec{\mathcal{B}}(\Delta, z, t) &= R_w[\Delta(t - t_2)] R_u(\pi) \vec{\mathcal{B}}(\Delta, z, t_2^{(-)}) \\
 &= \begin{pmatrix} \sin[\Delta(t - t_2 - T) + \phi(z, \Delta)] \left| \tilde{\Omega}(z, \Delta) \right| e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \\ \cos[\Delta(t - t_2 - T) + \phi(z, \Delta)] \left| \tilde{\Omega}(z, \Delta) \right| e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (1.20)
 \end{aligned}$$

où $T = t_2 - t_1$. Le changement de signe de la composante $v(\Delta, z, t_2)$ a pour effet de placer les vecteurs de Bloch de faible Δ en avance par rapport à ceux de plus grande vitesse angulaire. Il s'ensuit que la phase inhomogène $\Delta(t - t_2 - T)$ s'annule en $t = t_2 + T$, ce qui rétablit la polarisation macroscopique et rend possible l'émission d'une réponse radiative, longtemps après l'extinction des impulsions excitatrices. De l'Eq. 1.20 on déduit la cohérence :

$$\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) = \frac{i}{2} \tilde{\Omega}^*(z, \Delta) e^{-i\Delta(t-t_2-T) - \gamma_{ab}(t-t_1)} \quad (1.21)$$

En $t = t_2 + T$ on ne retrouve donc pas exactement la cohérence initiale mais son complexe conjugué. Nous verrons que cela correspond au retournement temporel du signal émis par rapport à l'impulsion initialement capturée. D'autre part l'effet de l'impulsion π ne se limite pas à la remise en phase des cohérences. Agissant sur un milieu faiblement excité, cette impulsion π porte tous les atomes dans l'état supérieur de la transition, rendant amplificateur un milieu initialement absorbant.

1.3.2 Généralisation à une impulsion d'aire quelconque

L'impulsion de rephasage est absorbée au cours de sa propagation à travers le milieu matériel. En général l'impulsion ne peut donc pas garder une aire constante dans toute l'épaisseur du matériau. Il est aisé de généraliser le calcul précédent au cas d'une impulsion d'aire quelconque. La rotation induite sur la sphère de Bloch par une impulsion d'aire $A_R(z)$ est décrite par la matrice :

$$R_u[A_R(z)] = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos[A_R(z)] & \sin[A_R(z)] \\ 0 & -\sin[A_R(z)] & \cos[A_R(z)] \end{pmatrix} \quad (1.22)$$

Après le passage de l'impulsion de remise en phase, le vecteur de Bloch s'écrit :

$$\vec{\mathcal{B}}(\Delta, z, t) = R_w[\Delta(t - t_2)] R_u[A_R(z)] \vec{\mathcal{B}}(\Delta, z, t_2^{(-)}) \quad (1.23)$$

La composante verticale, représentant la différence de population des niveaux, est proche de $-\cos[A_R(z)]$. La remise en phase n'est pas complète en général. Quelques manipulations trigonométriques élémentaires conduisent à l'expression finale de la fraction de la cohérence susceptible de se remettre en phase :

$$\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) = \frac{i}{4} (1 - \cos[A_R(z)]) \tilde{\Omega}^*(z, \Delta) e^{-i\Delta(t-t_2-T) - \gamma_{ab}(t-t_1)}. \quad (1.24)$$

Nous disposons maintenant des éléments nécessaires pour construire la polarisation macroscopique et la réponse radiative, appelée écho de photon, qu'elle émet autour de $t = t_2 + T$.

1.3.3 Formation du signal d'écho

Au moment où la réponse radiative se forme, la cohérence n'est plus simplement décrite par l'Eq. 1.24, expression de la précession libre du vecteur de Bloch en l'absence de champ. On doit tenir compte de l'effet en retour de l'écho sur les cohérences qui lui donnent naissance. Reprenant l'équation de Bloch optique 1.3, on y introduit la fréquence de Rabi $\Omega_E(z, t)$ qui représente l'écho. La différence de population n'évolue pas au cours de l'interaction. Elle conserve la valeur $-\cos[A_R(z)]$ qui a été fixée par l'impulsion de remise en phase. Intégrant formellement cette équation à partir d'un instant t_i postérieur au passage de l'impulsion de rephasage, et antérieur à l'émission de l'écho, on obtient :

$$\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) = \tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t_i) e^{-(i\Delta + \gamma_{ab})(t-t_i)} - \frac{i}{2} \cos[A_R(z)] \int_{t_i}^t \Omega_E(z, t') e^{-(i\Delta + \gamma_{ab})(t-t')} dt' \quad (1.25)$$

La valeur initiale $\tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t_i)$ est donnée par l'Eq. 1.24, ce qui conduit à :

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{ab}(\Delta, z, t) = & \frac{i}{4} (1 - \cos[A_R(z)]) \tilde{\Omega}^*(z, \Delta) e^{-i\Delta(t-t_2-T) - \gamma_{ab}(t-t_1)} \\ & - \frac{i}{2} \cos[A_R(z)] \int_{t_i}^t \Omega_E(z, t') e^{-(i\Delta + \gamma_{ab})(t-t')} dt'. \end{aligned} \quad (1.26)$$

Substituant cette expression dans l'Eq. 1.12, on obtient la densité de polarisation macroscopique sous la forme :

$$P(z, t) = P_1(z, t) + P_2(z, t) \quad (1.27)$$

où :

$$P_1(z, t) = \frac{i}{4} \mu_{ab} (1 - \cos[A_R(z)]) e^{i\omega_L t - ikz} e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \int d\Delta g(\Delta) \tilde{\Omega}^*(z, \Delta) e^{-i\Delta(t-t_2-T)} + \text{c.c.} \quad (1.28)$$

$$P_2(z, t) = -\frac{i}{2}\pi n\mu_{ab}e^{i\omega_L t - ikz} \cos[A_R(z)] \Omega_E(z, t) + \text{c.c.} \quad (1.29)$$

L'écho se construit à partir de $P_1(z, t)$, tandis que $P_2(z, t)$, décrivant la réaction de l'écho sur les atomes, est à l'origine de l'absorption du signal. Substituant l'Eq. 1.9 dans l'Eq. 1.28, on obtient :

$$\begin{aligned} P_1(z, t) &= \\ &= \frac{i}{4}\mu_{ab} (1 - \cos[A_R(z)]) e^{i\omega_L t - ikz} e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \int dt' \Omega(z, t') \int d\Delta g(\Delta) e^{-i\Delta(t+t'-2t_1-2T)} + \text{c.c.} \\ &= \frac{i}{2}\pi n\mu_{ab} (1 - \cos[A_R(z)]) e^{i\omega_L t - ikz} e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \Omega(z, 2t_1 + 2T - t) + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (1.30)$$

En substituant ces expressions dans l'équation d'onde on obtient finalement :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathcal{E}_E(z, t)}{\partial z} &= -\frac{\alpha}{2} \cos[A_R(z)] \mathcal{E}_E(z, t) \\ &\quad + \frac{\alpha}{2} (1 - \cos[A_R(z)]) e^{-\gamma_{ab}(t-t_1) - \alpha z/2} \mathcal{E}(0, 2t_2 - t). \end{aligned} \quad (1.31)$$

Nous avons négligé le terme de dérivée par rapport au temps, en supposant l'impulsion très longue par rapport au temps L/c nécessaire à la traversée du milieu absorbant. Par ailleurs, grâce à l'Eq. 1.17, l'amplitude de l'impulsion initiale intervient seulement par son expression dans la face d'entrée du milieu absorbant. Comme prévu, le peuplement du niveau supérieur par l'impulsion de rephasage peut inverser le signe du coefficient d'absorption effectif $\alpha \cos[A_R(z)]$ et rendre le milieu amplificateur pour le signal reconstruit. Par ailleurs, comme l'annonçait la conjugaison complexe du spectre dans l'Eq.1.24, le terme source fait apparaître un retournement temporel par rapport au signal initial.

La figure 1.1 illustre la séquence de temps complète, et la figure 1.2 récapitule les diverses manipulations exercées sur la sphère de Bloch durant la séquence d'écho à deux impulsions.

Mis à part le facteur d'absorption de l'impulsion initiale, l'Eq 1.31 est en accord avec l'Eq.(40) de la Réf. [16]. Pour résoudre l'équation et obtenir l'expression de l'écho à la sortie de l'échantillon, il nous faut connaître la distribution spatiale $A_R(z)$ de l'aire de l'impulsion de remise en phase.

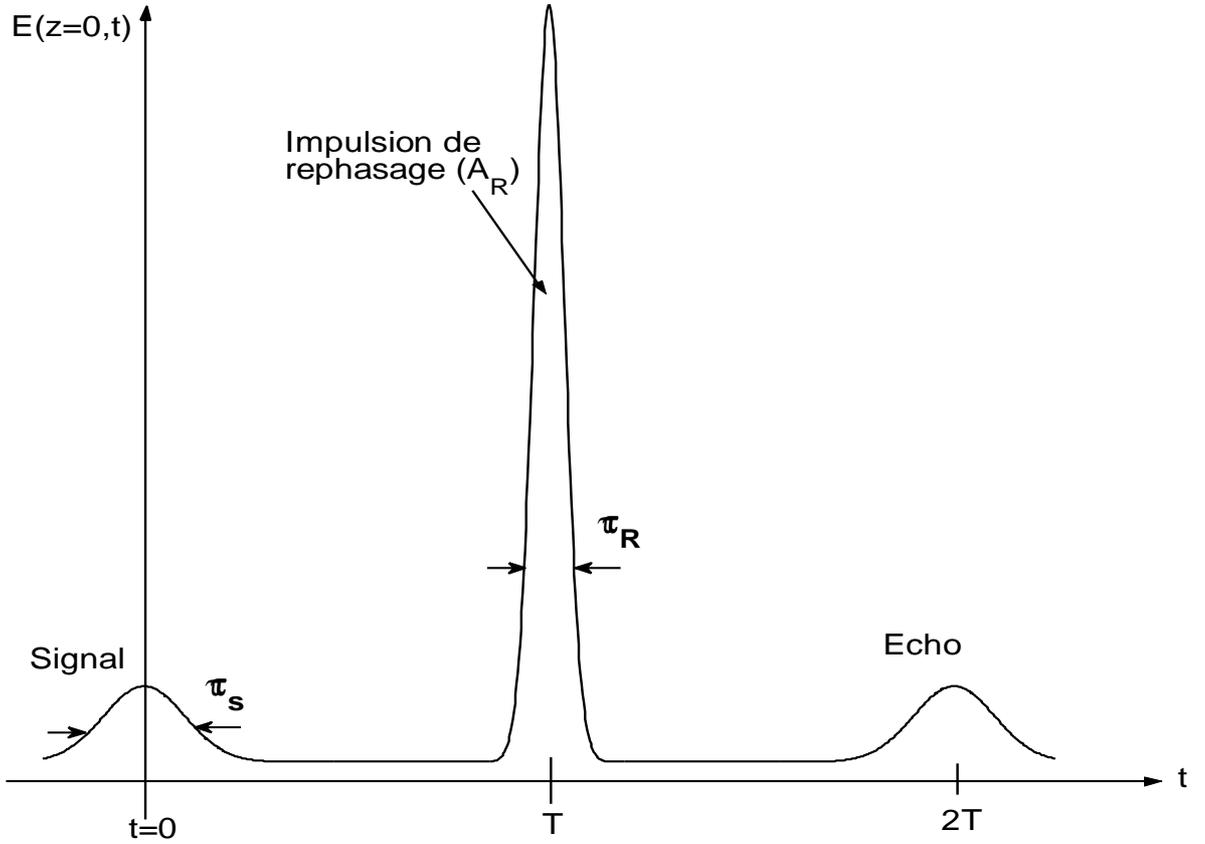


FIG. 1.1 – Séquence de temps pour l'écho de photon à deux impulsions. Le champ électrique en entrée du milieu atomique est représenté en fonction du temps. L'impulsion de signal est longue devant l'impulsion de rephasage ($\tau_s > \tau_R$), et la durée entre les deux vérifie $T < 1/\gamma_{ab}$.

1.4 Expression de l'écho à la sortie de l'échantillon

1.4.1 Propagation de l'impulsion de remise en phase, théorème de l'aire

Le théorème de l'aire, démontré par McCall et Hahn [17, 3], exprime l'évolution de l'aire d'une impulsion en fonction de la profondeur de pénétration dans un matériau absorbant :

$$\frac{\partial A_R(z)}{\partial z} = -\frac{\alpha}{2} \sin(A_R(z)), \quad (1.32)$$

Pour établir ce théorème on suppose que :

- l'échantillon est constitué d'un ensemble d'atomes à deux niveaux non dégénérés,
- la raie d'absorption est soumise à un élargissement inhomogène très supérieur à la largeur spectrale de l'impulsion,

les atomes dans le niveau supérieur avec une efficacité optimale. L'absorption correspondante reste cependant compatible avec la conservation de l'aire pourvu que l'impulsion s'étire au cours de sa propagation. En effet, à aire constante, l'intensité est inversement proportionnelle à la durée. A mesure que l'impulsion s'étire, l'intervalle spectral qu'elle couvre diminue, ce qui réduit d'autant la perte d'énergie par excitation atomique, alors même que l'énergie disponible s'épuise. Par ailleurs les multiples de 2π se comportent comme des attracteurs vers lesquelles tend l'aire de l'impulsion selon sa valeur initiale. Une aire inférieure à π tend vers 0 au cours de la propagation tandis qu'une aire comprise entre π et 3π tend vers 2π . Ces propriétés singulières correspondent à un comportement de type soliton, prédisant la propagation sans déformation ni atténuation d'une impulsion en secante hyperbolique d'aire égale à un multiple de 2π .

On trouvera en Annexe B l'analyse théorique et expérimentale détaillée de la propagation d'impulsions intenses dans un cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ de grande épaisseur optique [14]. Nous avons obtenu un bon accord qualitatif avec le théorème de McCall et Hahn. Nous avons effectivement observé l'étirement des impulsions d'aire voisine de π . Au-delà de π , l'efficacité d'excitation diminue, l'impulsion perd moins d'énergie et on s'attend à ce qu'elle retrouve sa durée initiale. C'est aussi ce que nous avons observé. Cependant, malgré nos conditions expérimentales quasi-idéales, nous ne sommes pas parvenus à un accord quantitatif avec les prédictions les plus fortes du théorème. En particulier nous n'avons pas observé la propagation sans atténuation des aires multiples de π . Nous attribuons ce désaccord à la mise en défaut de l'approximation unidimensionnelle utilisée pour établir le théorème. En effet l'aire de l'impulsion n'est pas uniforme dans la section du faisceau laser. Par exemple, l'aire, voisine de π sur l'axe du faisceau, décroît en fonction de la coordonnée radiale. Dans ces conditions l'aire est fortement atténuée sur les bords du faisceau alors qu'elle se conserve sur l'axe selon le théorème de McCall et Hahn. Le faisceau se trouve en quelque sorte "épluché". D'autre part, l'impulsion est alors étirée temporellement sur l'axe alors qu'elle conserve son profil temporel initial sur les bords. Seule une théorie à trois dimensions spatiales - éventuellement réduites à 2 par symétrie axiale - peut décrire correctement ces déformations complexes. Quoi qu'il en soit, le théorème de l'aire reste une base de calcul commode que nous allons utiliser pour résoudre l'équation de l'écho.

1.4.2 Résolution de l'équation de l'écho

Tout d'abord on observe que :

$$\mathcal{E}_E(z, t) = -e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)-\alpha z/2} \mathcal{E}(0, 2t_1 + 2T - t) \quad (1.33)$$

est une solution particulière de l'Eq. 1.31. On résout ensuite l'équation homogène :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_E(z, t)}{\partial z} + \frac{\alpha}{2} \cos[A_R(z)] \mathcal{E}_E(z, t) = 0$$

en effectuant le changement de variable $z \rightarrow A_R(z)$ à l'aide de l'Eq. 1.32. On obtient :

$$\mathcal{E}_E(z, t) = C \sin [A_R(z)] \quad (1.34)$$

où la constante C est déterminée par la condition initiale :

$$\mathcal{E}_E(0, t) = 0 = C \sin [A_R(0)] - e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \mathcal{E}(0, 2t_1 + 2T - t) \quad (1.35)$$

On obtient donc finalement :

$$\mathcal{E}_E(z, t) = \left(\frac{\sin [A_R(z)]}{\sin [A_R(0)]} - e^{-\alpha z/2} \right) e^{-\gamma_{ab}(t-t_1)} \mathcal{E}(0, 2t_1 + 2T - t) \quad (1.36)$$

La relation :

$$\text{tg} [A_R(z)/2] = e^{-\alpha z/2} \text{tg} [(A_R(0)/2)], \quad (1.37)$$

obtenue par intégration de l'Eq. 1.32, permet d'exprimer l'écho en fonction des différents champs à l'entrée de l'échantillon :

$$\mathcal{E}_E(z, t) = \frac{2 \sinh(\frac{\alpha z}{2})}{1 + e^{\alpha z} \cot^2 [A_R(0)/2]} \mathcal{E}(0, 2t_1 + 2T - t). \quad (1.38)$$

On définit l'efficacité de restitution comme le rapport d'intensité entre l'écho détecté et l'impulsion initiale :

$$\eta_E(A_R(0), b) = \left(\frac{2 \sinh(\frac{b}{2})}{1 + e^b \cot^2(A_R(0)/2)} \right)^2. \quad (1.39)$$

où $b = \alpha L$ représente l'opacité de l'échantillon. A opacité donnée, $\eta_E(A_R(0), b)$ est maximale pour une aire initiale $A_R(0) = \pi$. Dans notre modèle, une aire égale à π se propage sans atténuation. En portant tous les atomes dans le niveau supérieur, elle rend le milieu amplificateur sur toute sa longueur. Effectivement, $\eta_E(\pi, b) \cong e^b$ si $b \gg 1$. Plus généralement, le signal est amplifié sur toute l'épaisseur de l'échantillon si $A_R(0) < 3\pi/2$ et $A_R(L) > \pi/2$. La figure 1.3 illustre les variations de l'efficacité $\eta_E(A_R(0), b)$ en fonction de l'aire initiale de l'impulsion de rephasage pour différentes valeurs de l'opacité. Dès que $b \geq 1$, l'efficacité de restitution dépasse 1 pour une aire voisine de π . Comme le montre l'insert de la Fig. 1.3, l'efficacité de restitution présente un maximum de plus en plus marqué en π à mesure que l'opacité augmente. Ce comportement est lié à la variation très rapide de la profondeur de pénétration $L_P [A_R(0)]$ de l'impulsion lumineuse au voisinage de $A_R(0) = \pi$. Selon le théorème de l'aire, cette profondeur, infinie pour une aire de π , décroît rapidement dès qu'on s'écarte de cette valeur. Cette propriété est illustrée sur la Fig. 1.4 où $L_P [A_R(0)]$, définie comme la distance au bout de laquelle son aire est atténuée d'un facteur \sqrt{e} , est représentée autour de $A_R(0) = \pi$. L'atténuation de l'aire se traduit

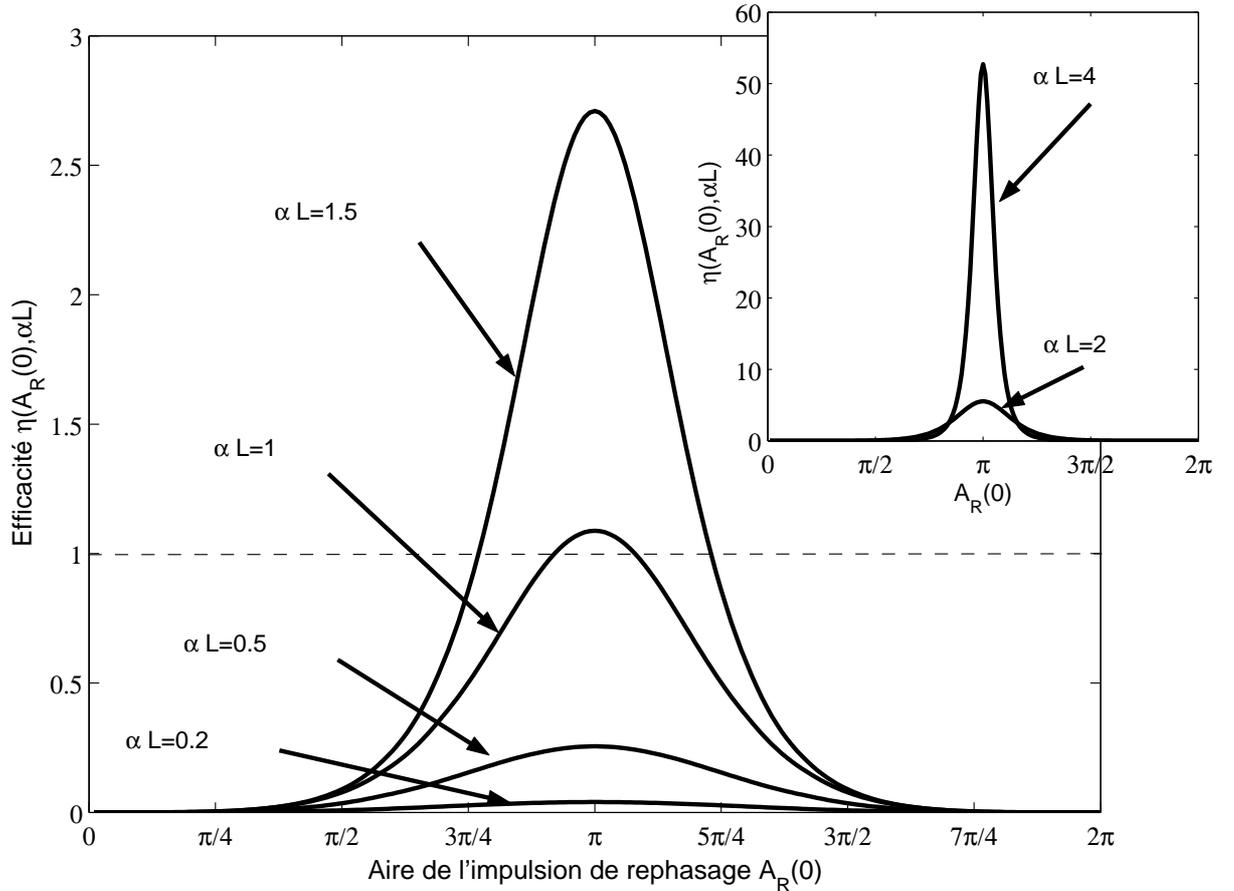


FIG. 1.3 – Efficacité de l'écho à deux impulsions en fonction de l'opacité $b = \alpha L$ et de l'aire de l'impulsion de rephasage à l'entrée du milieu atomique $A_R(0)$. On remarque que pour $A_R(0) = \pi$ et $b = 1$, l'efficacité de restitution est déjà supérieure à l'unité.

à la fois par une remise en phase moins efficace des cohérences atomiques et par une réduction de l'amplification liée à l'inversion de population.

Cependant il convient d'envisager avec prudence la promesse d'une efficacité élevée à forte opacité, pour $A_R(0) = \pi$. En effet, comme nous l'avons déjà remarqué, l'impulsion conserve son aire au prix d'un étirement temporel [14, 11] qui présente une double conséquence. D'une part la queue de l'impulsion de rephasage risque de se prolonger jusqu'au moment de l'émission de l'écho. Or l'augmentation de la séparation temporelle des impulsions est limitée par la durée de vie des cohérences. D'autre part l'étirement temporel se traduit par une réduction de la bande spectrale couverte par l'impulsion de rephasage, ce qui peut affecter l'écho comme un filtre passe-bande. A cela s'ajoutent les effets déjà évoqués de distorsion spatio-temporelle, provoqués par la variation de l'aire dans le faisceau en fonction de la distance à l'axe.

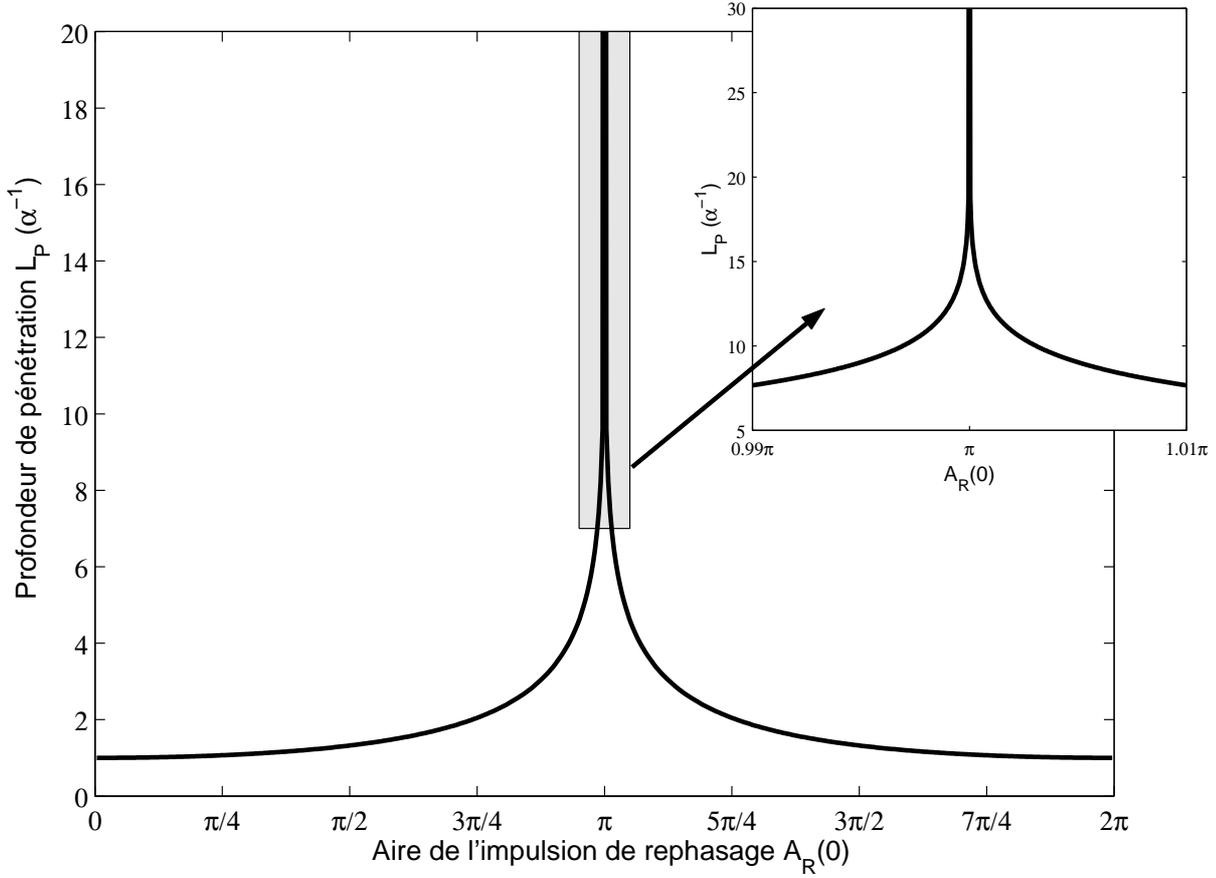


FIG. 1.4 – Profondeur de pénétration de l’impulsion de rephasage dans le milieu atomique. L_P est donnée en fonction en unité α^{-1} et représentée en fonction de $A_R(0)$. Elle est définie par : $A_R(L_P) = \frac{A_R(0)}{\sqrt{e}}$. L’encart montre cette même profondeur pour une aire égale à $\pi \pm 1\%$.

1.5 Echo de photon et mémoire quantique

A première vue l’écho de photon semble bien adapté au stockage quantique. Selon le théorème de non-clonage, le signal restitué ne peut pas conserver les propriétés quantiques du signal incident si l’efficacité est supérieure à 1. Or, pour une aire $A_R(0) = \pi$, requise pour optimiser la remise en phase des cohérences, l’efficacité est proche de 1 lorsque l’opacité est elle aussi voisine de 1 (cf. Fig. 1.3). Les conditions d’un stockage quantiques semblent donc réunies [18]. Malheureusement cette apparente adéquation ne résiste pas à l’analyse.

Tout d’abord un matériau d’opacité $b = 1$ laisse passer une fraction $1/e$ de l’intensité incidente, qui sera perdue pour la mémoire. L’efficacité unité est donc obtenue au prix d’une amplification qui, selon le théorème de non-clonage, dégrade la fidélité quantique de la restitution [19]. D’autre part, l’inversion de population produite par l’impulsion de

rephasage induit de l'émission spontanée, qui elle aussi dégrade la fidélité de la mémoire. On peut montrer que l'émission spontanée et l'écho contribuent à parts à peu près égales au signal reçu par le détecteur [11].

Néanmoins, malgré ses limites, l'écho de photon permet de s'approcher expérimentalement des conditions du stockage quantique. Il permet par exemple de tester les techniques de réjection angulaire et temporelle de la lumière parasite dans des conditions de faible signal, d'optimiser les durées relatives des impulsions, les diamètres relatifs des faisceaux. Il permet surtout d'éprouver l'accord avec la théorie et donc de valider les approximations et les hypothèses dans les conditions délicates de densité optique élevée et de faible niveau de signal. Enfin, la remise en phase des cohérences reste un élément fondamental des protocoles de stockage dans des matériaux à grand élargissement inhomogène. L'objectif n'est pas de trouver une approche alternative à la remise en phase mais de proposer une méthode de remise en phase alternative à l'impulsion π .

Nous allons à présent décrire les expériences d'écho à deux impulsions en régime de signal faible.

Chapitre 2

Expériences d’Echo à 2 impulsions

Sommaire

2.1	Introduction	39
2.2	Système physique	40
2.3	Dispositif expérimental	43
2.4	Réglages, calibration	47
2.4.1	Nutation optique et fréquence de Rabi	47
2.4.2	Nutation optique et orientation du cristal	48
2.4.3	Saturation et mesure de l’opacité	50
2.4.4	Calibration	51
2.5	Expérience et discussion	51
2.5.1	Résultats expérimentaux	51
2.5.2	Discussion	52
2.6	Conclusion	55

2.1 Introduction

En vue d’explorer les conditions de réalisation d’une mémoire quantique pour la lumière, nous avons mené jusqu’au bout le calcul du signal d’écho de photon à deux impulsions dans un milieu optiquement épais. Les hypothèses requises ont été précisées à chaque étape. Tout d’abord, le milieu absorbant était composé d’atomes immobiles, à deux niveaux. Tous les atomes présentaient la même force d’oscillateur. L’élargissement inhomogène de la raie d’absorption était très supérieur à la largeur spectrale des impulsions incidentes. Comme nous nous plaçons dans la perspective du stockage d’un signal composé de quelques photons, nous nous sommes limités au cas où la première impulsion agit comme une faible perturbation. Enfin, deux hypothèses nous ont permis de considérer

que les atomes sélectionnés par la première impulsion interagissaient tous de façon identique avec la seconde. Nous avons en effet supposé la seconde impulsion beaucoup plus courte, et de diamètre beaucoup plus grand, que la première. Il va sans dire que la durée de vie des cohérences optiques a été supposée assez longue pour permettre l'émission du signal d'écho.

Ce chapitre est consacré à la réalisation de l'expérience correspondante, dans le respect des hypothèses que nous venons de rappeler. Le milieu matériel choisi - un cristal de YAG ($\text{Y}_3^{3+}\text{Al}_5^{3+}\text{O}_{12}^{2-}$) dopé en ions thulium Tm^{3+} - se révèle particulièrement favorable à cette démonstration expérimentale. Nous détaillons les moyens mis en œuvre pour contrôler et mesurer précisément les paramètres des impulsions lumineuses. Nous confrontons enfin les résultats aux prédictions théoriques.

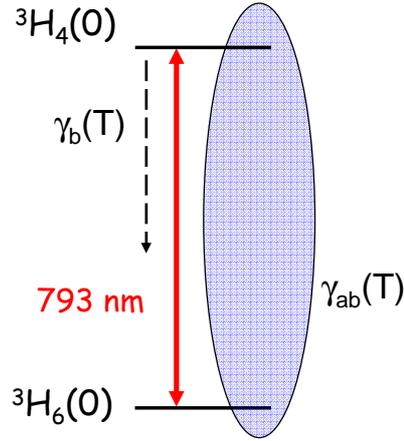
2.2 Système physique

Le thulium appartient à la famille des terres rares ou lanthanides. Ce sont les 13 éléments qui suivent le lanthane dans le tableau de classification périodique. Ils sont caractérisés par une couche $4f$ partiellement remplie. Leur structure électronique est de la forme :

$$(\text{coeur})^{46}5s^25p^64f^n5d^16s^2, \text{ avec } 1 \leq n \leq 13$$

où n varie de 1 pour le cérium ($Z = 58$) à 13 pour l'ytterbium ($Z = 70$). On trouve principalement les ions de terre rare au degré d'oxydation +III, qui est, à de rares exceptions près, leur seul état d'oxydation stable. Les ions triplement ionisés perdent les électrons des sous-couches $5d$ et $6s$. Les derniers électrons ajoutés, ceux de la couche $4f$, occupent des niveaux d'énergie plus profonds que les sous-couches $5s$ et $5p$. Les électrons des sous-couches $5s$ et $5p$ créent un écrantage pour les électrons $4f$, ce qui confère aux ions de terre rare triplement ionisés des propriétés de finesse spectrale remarquables. Dans l'ion libre sans interaction et sans couplage spin-orbite, toutes les configurations à l'intérieur de la couche $4f^n$ sont dégénérées. La dégénérescence est partiellement levée par les interactions électroniques qui divisent le niveau en configurations distinctes ^{2S+1}L , chacune dégénérée $(2S + 1)(2L + 1)$ fois. L'interaction spin orbite sépare les états propres de $J = L + S$. Chaque multiplet, caractérisé par L , S et J , état propre de J^2 est encore $2J + 1$ fois dégénéré. Les multiplets sont séparés de quelques milliers de cm^{-1} .

Lorsque les ions de terre rare sont insérés par substitution dans dans une matrice cristalline, les électrons $4f$ sont protégés de l'environnement par les électrons $5s$ et $5p$. L'interaction avec le champ cristallin, par effet Stark, peut être traitée comme une perturbation dans la base des états propres de l'interaction spin-orbite. Le champ cristallin mélange peu les multiplets. Cependant, le champ cristallin lève au moins partiellement



Spin nucléaire : $I=1/2$

FIG. 2.1 – Schéma du système à deux niveaux utilisé. Les niveaux ${}^3H_6(0)$ et ${}^3H_4(0)$ sont couplés par une transition de longueur d'onde $\lambda_0 = 793nm$. Les taux de relaxation du niveau excité (γ_b) et de la cohérence optique (γ_{ab}) dépendent de la température du cristal de $Tm^{3+} : YAG$.

la dégénérescence à l'intérieur de chaque multiplet L, S, J . Les sous-niveaux Stark qui en résultent sont séparés de quelques dizaines de cm^{-1} .

Les transitions dipolaires électriques internes entre états de même parité sont interdites. Les transitions entre configurations $4f^n$ sont donc en principe impossibles. Néanmoins, dans des sites sans symétrie d'inversion, la configuration $4f^n$ peut être mélangée avec la configuration de parité opposée $4f^{n-1}5d$, ce qui rend possible la transition dipolaire électrique. Ces transitions quasi-interdites présentent une force de raie très faible, de l'ordre de 10^{-8} , ce qui donne au niveau excité une longue durée de vie. L'écrantage par les couches $5s$ et $5p$, protège par ailleurs les électrons $4f$ des fluctuations du couplage à l'environnement. Ceci se traduit par un affinement des raies d'absorption. A basse température, dans un cryostat à hélium liquide, la largeur homogène de la raie se rapproche de la valeur fixée par l'inverse de la durée de vie de l'état excité. Une largeur homogène d'une centaine de Hertz a ainsi été observée dans $Er : YSO$ [20]. La durée de vie des cohérences optiques, donnée par l'inverse de la largeur homogène, atteint alors près de 3 ms.

Le seul isotope du thulium, ${}^{169}Tm$, possède 69 protons et 100 neutrons. L'ion thulium trivalent Tm^{3+} possède 66 électrons, dont 12 électrons dans la couche $4f$. La configuration correspondante est $4f^{12}$, $S = 1$, $L = 5$. Dans un cristal de YAG, les ions thulium se substituent à des ions yttrium qui occupent des sites de symétrie D_2 . La dégénérescence électronique est complètement levée par le champ cristallin dans un site d'aussi basse symétrie. Les ions se comportent donc comme des atomes à deux niveaux non-dégénérés.

Les raies optiques fines, associées à des cohérences de grande durée de vie, correspondent aux transitions entre les sous-niveaux de plus basse énergie des multiplets Stark. La raie à 793nm de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ correspond à la transition ${}^3H_6(0) \rightarrow {}^3H_4(0)$ (voir Fig.2.1). Elle présente une largeur homogène de 3 kHz dans un échantillon de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ de faible concentration (0.1 at.%) à une température de 1.5 K [21]. La durée de vie des cohérences optiques atteint alors plus de $100\mu\text{s}$. L'échantillon que nous avons utilisé présente un taux de substitution de 0.5%, ce qui se traduit par une largeur homogène un peu plus élevée. La largeur inhomogène du profil d'absorption est de l'ordre de 20 GHz.

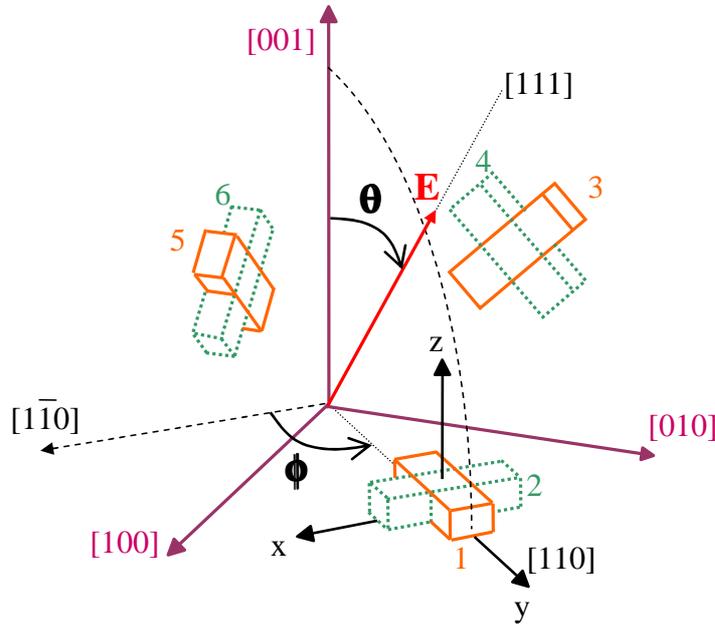


FIG. 2.2 – Orientation des six sites cristallins pour la transition ${}^3H_6 \leftrightarrow {}^3H_4$ du Tm^{3+} en matrice YAG. Avec un champ électrique polarisé suivant $[111]$ ($\theta = \arccos(1/\sqrt{3}) \cong 54.7^\circ$, $\phi = 90^\circ$), on excite de manière équivalente les trois sites (1,3 et 5) couplés au champ.

Nous disposons ainsi d'un milieu absorbant composé d'atomes à deux niveaux, immobiles, distribués sur un large intervalle spectral et dotés, au regard des performances de l'électronique, de cohérences optiques de longue durée de vie. Encore faut-il que ces ions présentent tous la même force d'oscillateur, afin qu'une fréquence de Rabi commune puisse être définie. Dans le YAG, les ions thulium sont répartis dans 6 sites d'orientation différentes (voir Fig. 2.2). Les sites se distinguent en particulier par la direction des dipôles de transition, portée par les diagonales des faces de la cellule élémentaire. On vérifie aisément que le coefficient d'absorption est indépendant de la direction de polarisation de la lumière. Cependant, si la lumière incidente est polarisée rectilignement suivant la diagonale $[1, 1, 1]$ de la cellule cristalline, le champ lumineux forme le même angle de $\arccos(\sqrt{2/3}) \cong 35^\circ$ avec les dipôles des ions situés dans les sites 1, 3 et 5. Ces ions sont

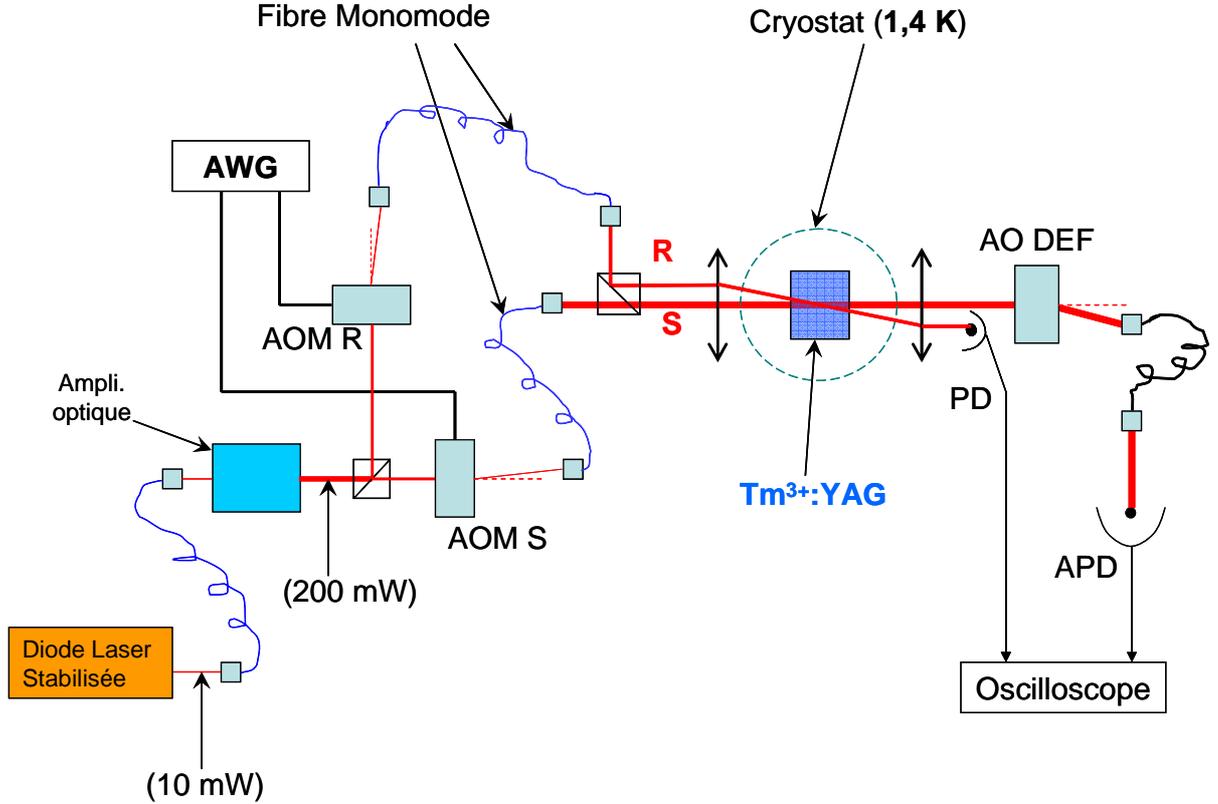


FIG. 2.3 – Schéma général du montage pour l'expérience d'écho de photon à deux impulsions. Le laser est stabilisé par un asservissement de type Pound-Drever-Hall (AWG : générateur de formes arbitraires ; AOM S et AOM R : modulateurs acousto-optiques pour les faisceaux de signal et de rephasage ; AOM DEF : déflécteur acousto-optique ; PD : photodiode ; APD : photodiode à avalanche).

donc excités avec la même fréquence de Rabi. Au contraire, dans les sites 2, 4, et 6, les dipôles, orthogonaux au champ, ne sont pas couplés au champ incident. Le milieu absorbant satisfait alors toutes les conditions du calcul présenté dans le chapitre précédent.

2.3 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est représenté sur la Fig. 2.3. Il se compose d'un ensemble de production et de mise en forme des impulsions lumineuses, d'un cryostat à hélium liquide où nous plaçons l'échantillon et d'un ensemble de détection.

Un faisceau continu monochromatique à 793nm est produit par un laser diode stabilisé sur une cavité Fabry-Perot de grande finesse ($F=3000$) à l'aide d'un asservissement de type Pound-Drever-Hall [22]. On atteint ainsi une stabilité relative de 250 Hz sur 10 ms. La puissance est portée de 10 mW environ à 200 mW par un amplificateur à semi-conducteur

commercial ¹. La source est protégée des réflexions en aval par un isolateur optique à effet Faraday de 60dB. Une lame $\lambda/2$ combinée à un cube séparateur en polarisation, permet ensuite de répartir la puissance entre le faisceau signal, transmis à travers le cube, et le faisceau de rephasage, réfléchi à 90° . L'essentiel de la puissance disponible passe dans le faisceau de rephasage.

Les impulsions requises pour l'expérience d'écho sont découpées dans les deux faisceaux correspondants à l'aide des modulateurs acousto optiques respectivement notés AOM S et AOM R. Il s'agit de composants en TeO_2 , fonctionnant en mode longitudinal autour de la fréquence centrale $\Omega = 80 \text{ MHz}$ ². Les impulsions mises en forme sont recueillies dans l'ordre 1 de diffraction des AOM. Les deux dispositifs sont directement alimentés, à travers des amplificateurs appropriés, par les deux sorties d'un générateur de forme arbitraire (Arbitrary Waveform Generator : AWG) commercial ³ à taux d'échantillonnage élevé (10^9 échantillons/s). Ainsi sommes-nous en mesure de contrôler précisément les deux impulsions, en phase et en amplitude. Nous pouvons par exemple programmer une fonction de la forme $E(t) \cos [\Omega t + \phi(t)]$ sur l'AWG et envoyer ce signal radio-fréquence (RF), centré à Ω , sur un AOM. En régime de fonctionnement linéaire des AOM, un faisceau lumineux incident de fréquence optique ω_0 sera diffracté dans l'ordre 1 avec une amplitude $E(t) \cos [(\omega_0 + \Omega)t + \phi(t)]$. L'impulsion lumineuse n'est rien d'autre que le signal RF, décalé de ω_0 . Un filtrage spatial par des fibres monomodes assure ensuite la mise en forme spatiale des impulsions et la réjection des fuites dans l'ordre 0 des AOM. L'injection est optimisée par la méthode de parcours inverse : on superpose le faisceau à injecter avec un faisceau qui sort de la fibre. On atteint ainsi un taux d'injection de l'ordre de 60%. On tire surtout parti du filtrage spatial assuré par la fibre pour éliminer l'ordre 0 des AOM, c'est à dire la composante continue du faisceau laser. On atteint ainsi un taux de réjection de l'ordre de 120dB, suffisant pour détecter un signal au niveau du photon unique. En sortie de fibre, les faisceaux sont gaussiens (TEM_{00}), polarisés elliptiquement, et de même taille. On rétablit la polarisation rectiligne à l'aide d'une lame $\lambda/4$, et on règle sa direction à l'aide d'une lame $\lambda/2$.

Les deux faisceaux collimatés sont focalisés dans le cristal, placé dans le plan focal de la lentille. Dans l'étude théorique de l'écho nous avons supposé que la seconde impulsion éclaire de façon uniforme tous les atomes excités par la première impulsion et situés à la même profondeur z . Cette condition de recouvrement spatial impose que le faisceau de signal ait, avant la lentille de focalisation de focale f , un waist $w_{S(1)}$ plus grand que celui, $w_{R(1)}$, du faisceau de rephasage. En effet, suivant la formule de conjugaison des faisceaux

¹TOPTICA, "tapered amplifier", modèle BoosTA

²AA Opto Electronic

³Tektronix, modèle AWG520

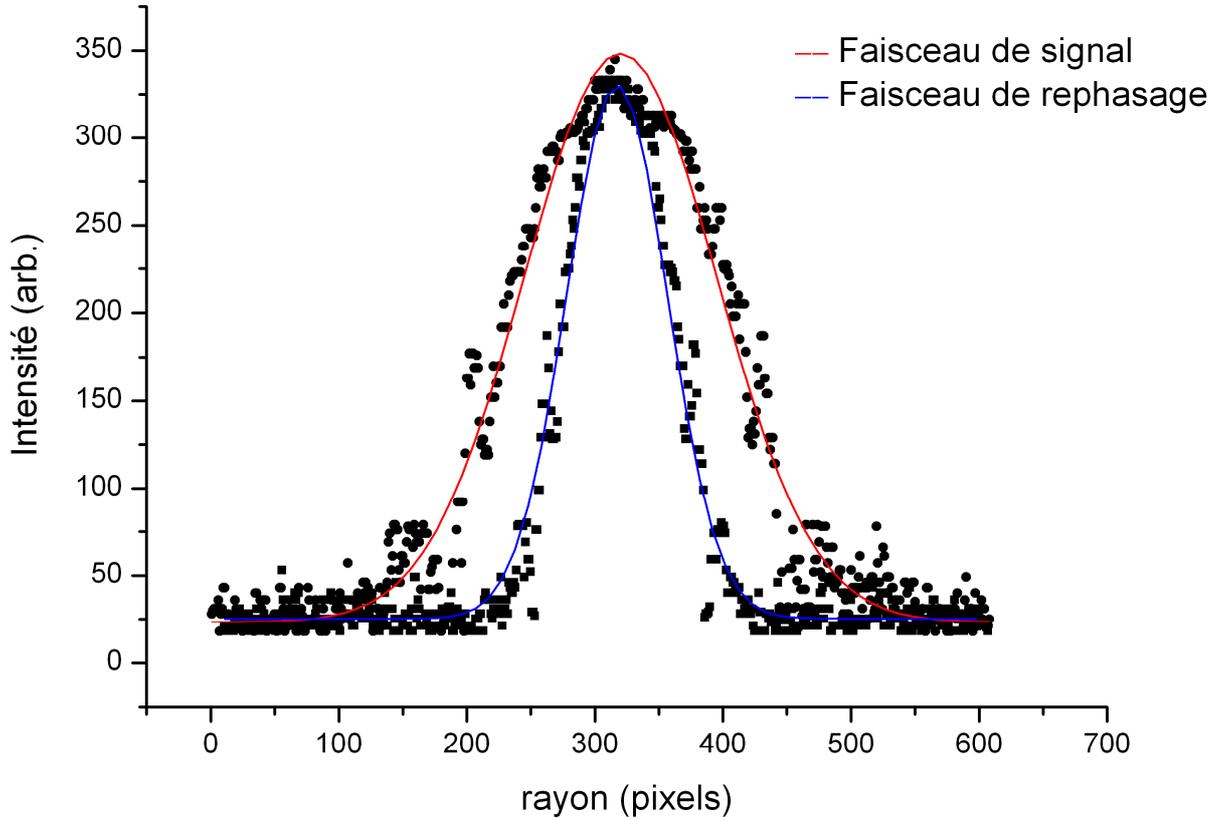


FIG. 2.4 – Profils spatiaux des faisceaux de signal et de rephasage avant focalisation dans le milieu atomique.

gaussiens :

$$w_1 w_2 = \lambda_0 f / \pi,$$

le rapport des waists est inversé par le passage à travers la lentille. Pour obtenir, dans le cristal, un faisceau signal 2 fois plus petit que le faisceau de rephasage, nous doublons le diamètre du faisceau signal avant la lentille. L'analyse des faisceaux sur une camera CCD est illustrée par la Fig. 2.4. Les mesures qui en résultent, $w_{S(1)} = 1.35$ mm et $w_{R(1)} = 0.7$ mm, conduisent à des waists $w_{S(2)} = 18\mu\text{m}$ et $w_{R(2)} = 36\mu\text{m}$, au foyer d'une lentille de focale $f = 10\text{cm}$. Une autre lentille en sortie du cryostat permet de recollimater les faisceaux.

L'impulsion de rephasage doit évidemment éclairer les atomes sélectionnés par la première impulsion, non seulement au foyer de la lentille, mais aussi dans toute l'épaisseur du cristal. Il en est ainsi pourvu que les faisceaux ne divergent pas trop dans l'échantillon, c'est-à-dire à condition que la longueur $L = 5\text{mm}$ du cristal soit inférieure à la profondeur de champ $b = 2\pi n w^2 / \lambda$, définie comme le double de la distance de Rayleigh, où $n = 1.82$ représente l'indice du YAG. La profondeur de champ $b_{S(2)} = 4,6$ mm associée au faisceau

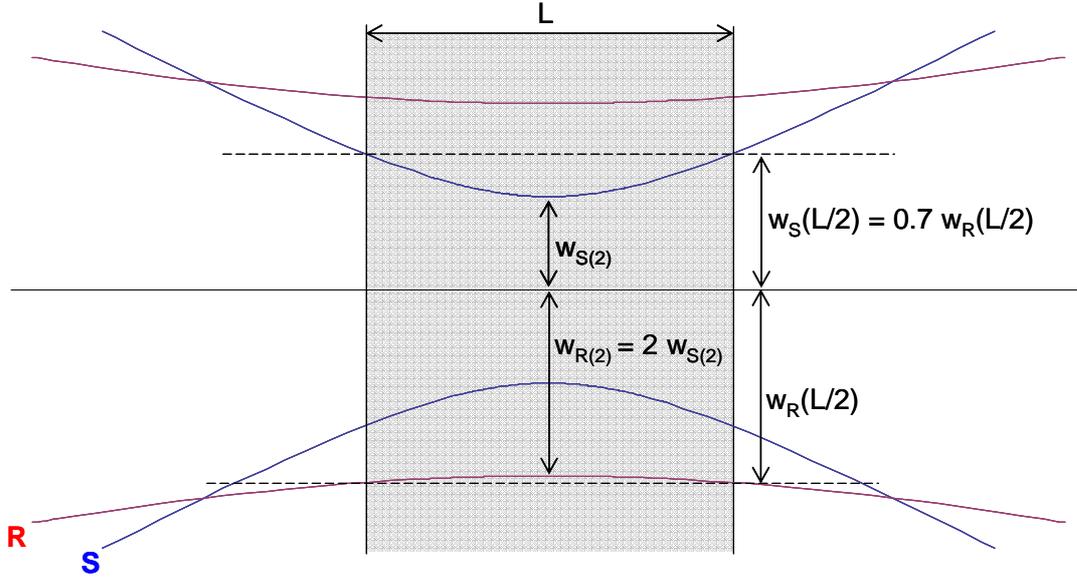


FIG. 2.5 – Profil spatial des faisceaux de signal et de rephasage au niveau du milieu atomique. Le recouvrement des faisceaux n'est pas spatialement uniforme sur toute la longueur de propagation, et il en résulte une variation de l'aire de rephasage sur la zone du milieu atomique préalablement excitée par l'impulsion de signal.

signal se révèle un peu juste. Celle du faisceau de rephasage, $b_{R(2)} = 4b_{S(2)}$ est largement suffisante. Par définition de la distance de Rayleigh, les atomes sélectionnés par la première impulsion sont donc répartis sur un disque de diamètre $\sqrt{2}w_{S(2)}$, qui reste inférieur à $w_{R(2)}$, comme l'illustre la Fig. 2.5

Le signal d'écho est détecté sur une photodiode à avalanche intégrée dans un module avec un amplificateur ⁴. Le constructeur annonce une sensibilité photo-électrique de $1.5 \cdot 10^6$ V/W à 800 nm, un seuil de détection de 0.8 nW et une dynamique de 7500. Le seuil de détection correspond à environ 3000 photons/ μ s. Le détecteur ne permet donc pas de travailler au niveau du photon unique. Pour éviter l'éblouissement du détecteur par l'impulsion intense de remise en phase, on le protège à l'aide d'une porte optique qui ne s'ouvre qu'au passage du signal. Cette fonction est assurée par un AOM. Cependant, pour améliorer la réjection de l'impulsion qui passe dans l'ordre 0, on utilise un AOM où les ondes acoustiques se propagent en mode de cisaillement. Par rapport aux AOM utilisés pour le façonnage des impulsions, la vitesse acoustique V est réduite de 4200m/s à 650m/s, ce qui se traduit par une séparation angulaire de $\lambda_0\Omega/V = 100$ mrad entre les ordres 0 et 1, environ 7 fois plus grande que dans les AOM de façonnage. En contrepartie, le temps d'ouverture se trouve réduit dans la même proportion. Pour un diamètre de faisceau de 4mm environ, le temps d'ouverture dépasse 6 μ s. Un temps aussi long n'est pas tolérable

⁴Hamamatsu, modèle C5460

pour le façonnage d'impulsion mais suffit pour l'ouverture de la porte temporelle. La réjection de l'impulsion de rephasage est améliorée par filtrage du signal d'écho à travers une fibre monomode. On y optimise l'injection de l'écho dont la divergence angulaire diffère de celle du faisceau de rephasage. Toutes ces précautions sont indispensables à la détection d'un signal de très faible niveau. En effet une impulsion de rephasage d'aire π transporte $\approx 10^{12}$ photons.

2.4 Réglages, calibration

2.4.1 Nutation optique et fréquence de Rabi

Excité à résonance par une onde monochromatique, un atome à deux niveaux effectue des va-et-vient entre le fondamental et le niveau excité. Ce sont les oscillations de Rabi, dont la fréquence est précisément donnée par la pulsation de Rabi. Considérons un milieu d'opacité $\alpha L \ll 1$, dont la raie d'absorption présente un élargissement inhomogène très supérieur à la fréquence de Rabi, elle-même très supérieure à la largeur homogène de la transition. On commute à l'instant $t = 0$ une impulsion monochromatique en marche d'escalier, portée par un faisceau de profil spatial gaussien, d'intensité axiale \mathcal{I}_0 . L'intensité transmise ne suit pas le profil temporel en échelon de l'impulsion incidente. Elle présente des oscillations transitoires correspondant à l'interférence entre le champ incident et la réponse radiative cohérente des atomes. C'est le phénomène de *nutation optique*. On montre aisément que l'intensité transmise évolue en fonction du temps sous la forme :

$$\mathcal{I}(t) = \mathcal{I}_0 \left(1 - 2\alpha L \frac{J_1(\Omega_0 t)}{\Omega_0 t} \right), \quad (2.1)$$

où J_1 représente la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1 et Ω_0 désigne la fréquence de Rabi sur l'axe du faisceau. Comme le décrit la fonction de Bessel, les oscillations s'amortissent sous l'effet conjoint de la non-uniformité radiale du champ et de l'élargissement inhomogène de la transition qui fait osciller les ions à une fréquence de Rabi effective $\Omega_{eff} = \sqrt{\Omega_0^2 + \Delta^2}$, fonction du désaccord Δ . Malgré cet amortissement, le phénomène d'oscillation reste étonnamment robuste. Il est remarquable qu'on parvienne à observer les oscillations de Rabi en présence d'un élargissement inhomogène quasi-infini à l'échelle de la largeur homogène, et en dépit de la non-uniformité radiale de l'intensité dans le faisceau exciteur. Ainsi la nutation optique offre-t-elle un accès simple et direct à la fréquence de Rabi.

Pour satisfaire la condition de faible opacité, on amène le laser sur le bord de la bande d'absorption. L'enregistrement de la figure 2.6 a été obtenu en décalant la fréquence du laser de 5 GHz par rapport au centre de la bande d'absorption. En ajustant le profil

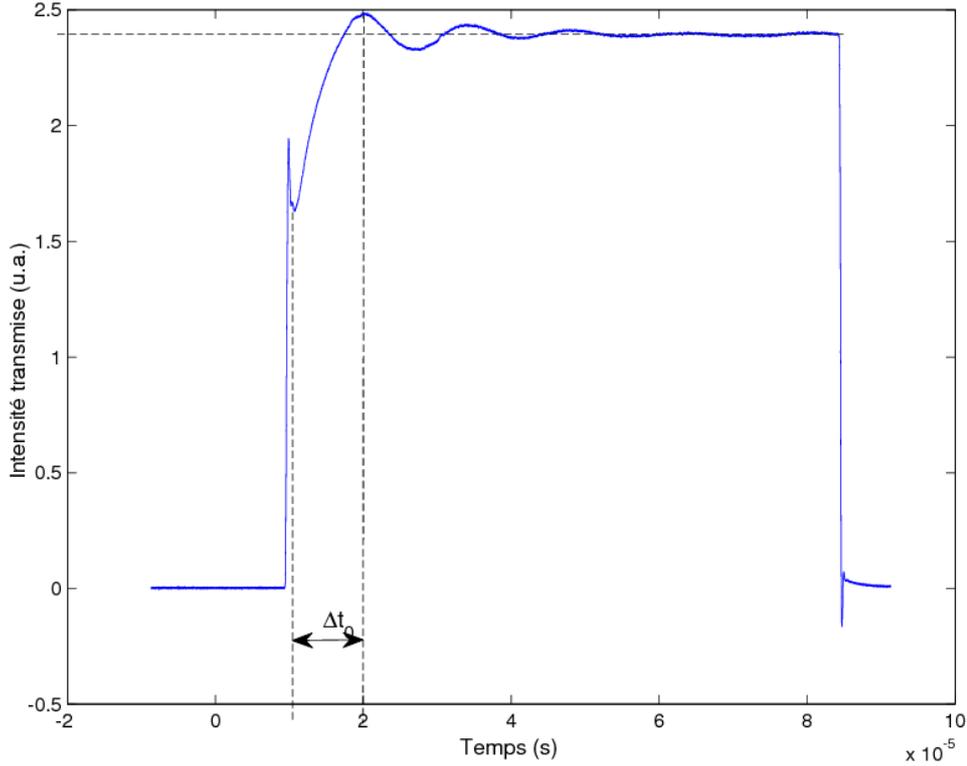


FIG. 2.6 – Signal de nutation optique obtenu hors-résonance. L’opacité, obtenue par comparaison des transmissions en début et en fin d’impulsion, vaut $\alpha L = 0.4 < 1$. On détermine la fréquence de Rabi en utilisant la valeur du premier maximum du signal : $\Omega_0 \Delta t_0 = 5.1$. Une autre méthode consiste à réaliser un ajustement de l’équation 2.1 sur la courbe.

théorique donné par l’Eq. 2.1 aux données expérimentale, on détermine Ω_0 avec précision. Sur cet exemple, on obtient $\Omega_0^{(ref)} = 550$ krad/s.

2.4.2 Nutation optique et orientation du cristal

Comme on l’a vu en Section 2.2, la direction du dipôle de la transition ${}^3H_6 \leftrightarrow {}^3H_4$ dépend du site d’insertion [23]. Dans le cryostat nous orientons l’axe cristallographique $[1\bar{1}0]$ de l’échantillon selon la direction de propagation Oz des faisceaux. Nous avons vu que, si la lumière incidente est polarisée rectilignement suivant la diagonale $[1, 1, 1]$ de la cellule cristalline, les dipôles des ions situés dans les sites 1, 3 et 5 forment tous le même angle avec le champ lumineux. Leur interaction avec le champ est caractérisée par la même pulsation de Rabi. Quant aux ions situés dans les sites 2, 4, et 6, leur dipôle de transition est orthogonal au champ. Ils ne sont donc pas couplés au champ incident.

Nous optimisons la direction de la polarisation par nutation optique, tirant parti d’un

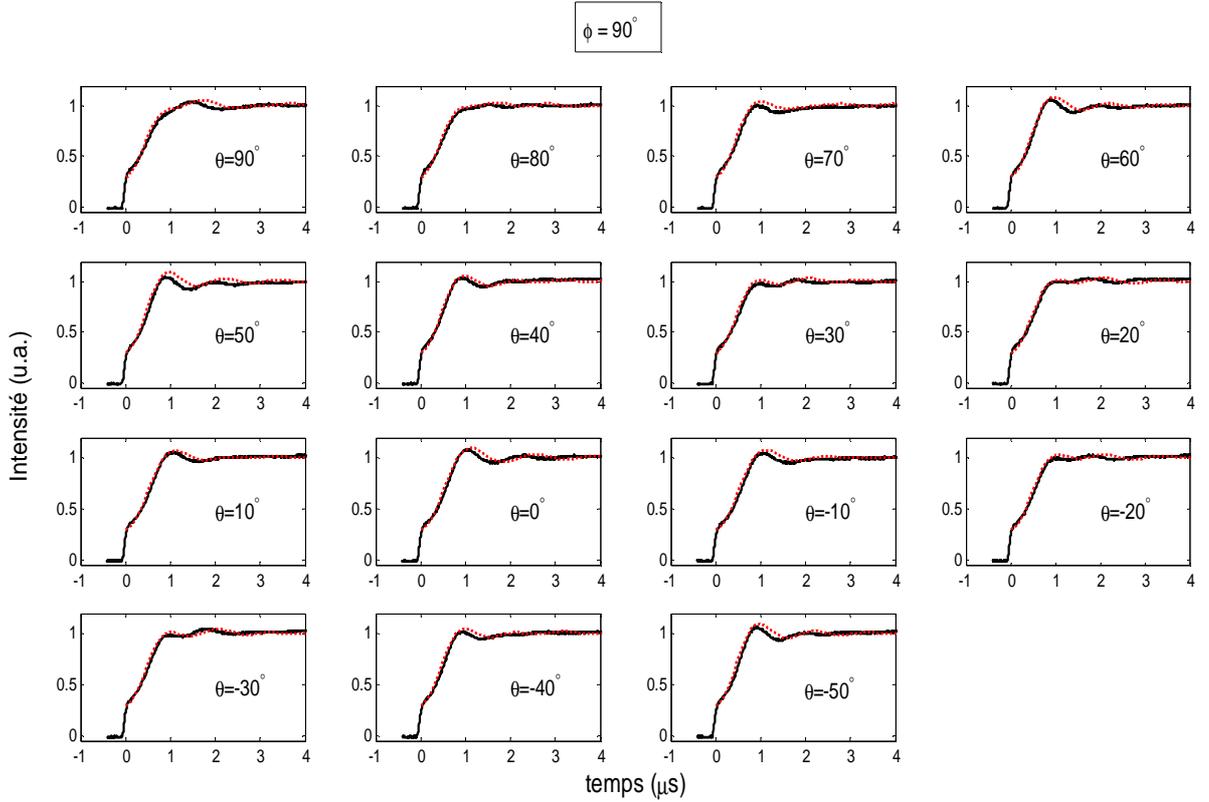


FIG. 2.7 – Effet de la polarisation du champ électrique sur le signal de nutation. Le vecteur champ électrique du rayonnement laser est repéré par les coordonnées sphériques θ et $\phi = 90^\circ$ (voir fig. 2.2). La polarisation qui optimise le couplage, parallèle à $[111]$, correspond à $\theta = \arcsin(1/\sqrt{3}) = 54,7^\circ$. Lorsque $\theta = 0^\circ$, les sites 3,4,5 et 6 sont couplés au champ avec la même fréquence de Rabi. Les dipôles de transition forment alors un angle de 45° avec le champ. Cet angle se réduit à $\arcsin(\sqrt{2/3}) = 35,3^\circ$ pour $\theta = 54,7^\circ$ (voir fig. 2.2).

accès direct à la fréquence de Rabi. Le signal de nutation combine les réponses radiatives dans les différents sites excités. Tant que ces sites ne sont pas couplés au champ de manière identique, les oscillations de Rabi se produisent à des fréquences différentes, ce qui brouille le phénomène de nutation (voir Fig. 2.7). Lorsque la polarisation est orientée suivant $[111]$, les oscillations retrouvent leur netteté, en accord avec le profil de nutation représenté sur la Fig. 2.6. On reconnaît le même profil de nutation, mais avec une fréquence de Rabi plus faible, pour une polarisation parallèle à l'axe vertical $[0, 0, 1]$. Les sites 3, 4, 5 et 6 sont alors couplés au champ de façon identique, tandis que les sites 1 et 2, perpendiculaires au champ, restent inactifs. Les dipôles de transition forment un angle de 45° avec le champ, alors que cet angle vaut $\arcsin(\sqrt{2/3}) = 35,3^\circ$ pour une polarisation parallèle à $[1, 1, 1]$. Dans ce dernier cas la fréquence de Rabi est d'environ 15% plus élevée.

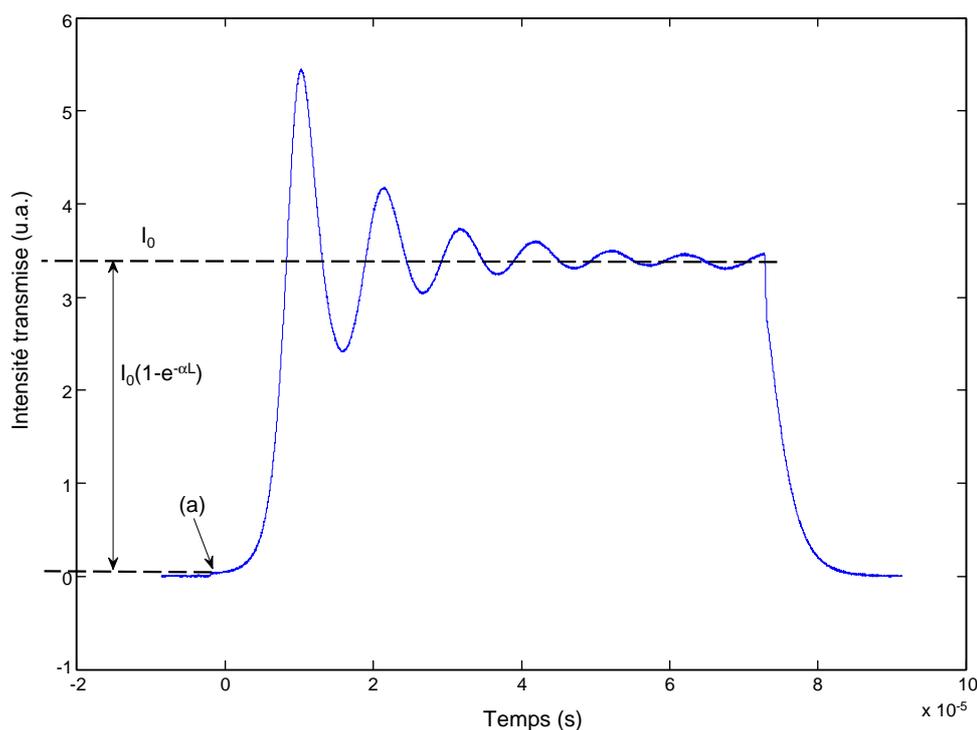


FIG. 2.8 – Signal de nutation optique obtenu à résonance. Le rapport entre la transmission au démarrage de la courbe (point (a)) et la transmission finale vaut $e^{-\alpha L}$. On en déduit que $\alpha_0 L = 4.4$.

2.4.3 Saturation et mesure de l'opacité

L'excitation en marche d'escalier permet la mesure de la fréquence de Rabi par nutation optique à condition que $\alpha L \ll 1$. Le même type d'excitation permet aussi de mesurer l'opacité du matériau au centre de la bande d'absorption. En effet le front montant de l'impulsion incidente rencontre un matériau dans l'état fondamental, dont l'absorption n'a pas encore été perturbée par le champ exciteur. L'intensité transmise s'écrit donc :

$$\mathcal{I}(0) = \mathcal{I}_0 e^{-\alpha L} .$$

A mesure que le temps s'écoule, les populations des niveaux fondamental et excité tendent à s'égaliser sous l'effet de l'excitation optique. Au bout d'un temps $\tau_P \gg 2\pi/\Omega$ le milieu est complètement blanchi. L'absorption s'annule et

$$\mathcal{I}(\tau_P) = \mathcal{I}_0 .$$

On voit sur la figure 2.8 le résultat d'une expérience de blanchiment à résonance.

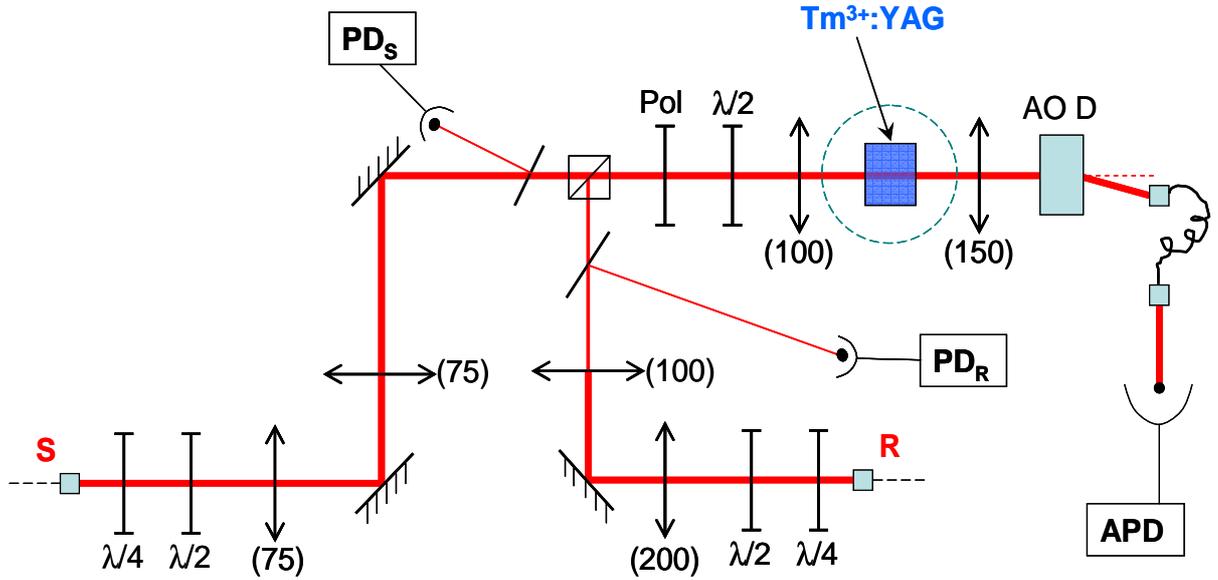


FIG. 2.9 – Schéma détaillé de la partie du montage consacrée à la calibration des détecteurs. En plus de la mise en forme spatiale et du contrôle de la polarisation du champ, ce montage permet de calibrer la fréquence de Rabi, et donc l'aire de l'impulsion de rephasage. L'expérience de nutation nécessaire à la calibration se fait sur le faisceau de rephasage.

2.4.4 Calibration

La figure 2.9 détaille les éléments optiques utilisés pour la calibration de la puissance des faisceaux. A chaque valeur de la fréquence de Rabi est associée une mesure de la puissance prélevée sur la photodiode PD_R , ce qui permet d'étalonner ce détecteur en fonction de la fréquence de Rabi Ω_{R0} du faisceau de rephasage. La photodiode PD_S remplit le même office sur la voie "signal" et permet de contrôler Ω_{S0} . Ces photodétecteurs nous permettent aussi de contrôler le profil temporel des impulsions incidentes. On notera l'association d'un polariseur et d'une lame $\lambda/2$ sur le tronçon commun aux deux faisceaux, juste avant le cryostat. Ces éléments permettent d'optimiser la polarisation du champ par rapport aux axes cristallins, comme expliqué en sous-section 2.4.2.

2.5 Expérience et discussion

2.5.1 Résultats expérimentaux

Pour réaliser l'expérience d'écho nous utilisons des impulsions de profil temporel gaussien. Le spectre de ces impulsions couvre un intervalle plus étroit que celui des impulsions rectangulaires, ce qui permet de satisfaire plus aisément la condition de couverture spec-

trale de l'impulsion signal par l'impulsion de rephasage. Par ailleurs nous avons observé expérimentalement qu'une impulsion gaussienne d'aire voisine de π s'étire moins qu'une impulsion rectangulaire au cours de sa propagation à travers le milieu absorbant. Cette propriété est importante. Elle garantit en effet que l'impulsion conservera une largeur spectrale suffisante pour remettre en phase tous les atomes. Par ailleurs, nous espérons que la queue temporelle de l'impulsion ne contaminera pas trop le signal d'écho. Les durées d'impulsion à mi-hauteur sont fixées à $\tau_S = 5\mu s$ et $\tau_R = 2\mu s$ pour le signal et la remise en phase respectivement. Les deux impulsions sont séparées de $25\mu s$, cet intervalle étant choisi comme un compromis entre l'atténuation de l'écho par relaxation des cohérences et la contamination de l'écho par la queue de l'impulsion de remise en phase. L'aire de l'impulsion signal, $A = 0.09\pi$, satisfait la condition de champ faible utilisée dans l'analyse théorique.

Une séquence expérimentale typique est présentée sur la Fig. 2.10. Nous mesurons les variations de l'efficacité de restitution $\eta_{exp}(A_R(0))$ en fonction de l'aire $A_R(0)$ de l'impulsion de remise en phase à l'entrée du cristal. L'efficacité $\eta_{exp}(A_R(0))$ est définie comme le rapports des maxima des profils temporels d'intensité de l'écho et de l'impulsion initiale. Nous sommes en mesure de faire varier $A_R(0)$ de 0 à 3π . Les résultats expérimentaux sont présentés sur la Fig. 2.11.

2.5.2 Discussion

Le maximum d'efficacité est obtenu pour $A_R(0) = 1.1\pi$, ce qui correspond à la valeur théorique attendue, compte tenu des barres d'erreur sur l'aire de rephasage. De même, la diminution de η_{exp} jusqu'à 0 pour $A_R(0) = 2\pi$ est prévue par la théorie vue au chapitre précédent. En effet, on a alors affaire au phénomène de transparence auto-induite proprement dit pour l'impulsion de rephasage, qui traverse le milieu sans exciter le système atomique. Enfin, la remontée vers un second maximum pour $A_R(0) = 3\pi$ est également prévue par l'expression de $\eta_E(A_R(0), b)$.

En revanche, la valeur de $\eta_{exp}(1.1\pi) = 0.92$, bien qu'élevée, diffère de deux ordres de grandeur de la valeur prévue par la théorie en l'absence de relaxation des cohérences, $\eta_E(\pi, 5) \approx 146$. Plusieurs raisons permettent d'expliquer cet écart conséquent.

Tout d'abord la durée totale de la séquence expérimentale ne nous autorise pas à négliger la relaxation des cohérences. D'après la Fig. 2.10, l'écho de photon atteint son maximum $55\mu s$ après l'impulsion signal. Avec $T_2 = 50\mu s$, on calcule une atténuation d'un facteur ≈ 9.0 de l'écho par rapport au signal.

D'autre part on observe sur la figure 2.10 que l'écho est étiré d'un facteur de l'ordre de 1.6 par rapport au signal initial. Ceci doit être mis en relation avec l'étirement de l'impulsion de rephasage elle même. Sur la figure 2.10 on voit que la durée de l'impulsion

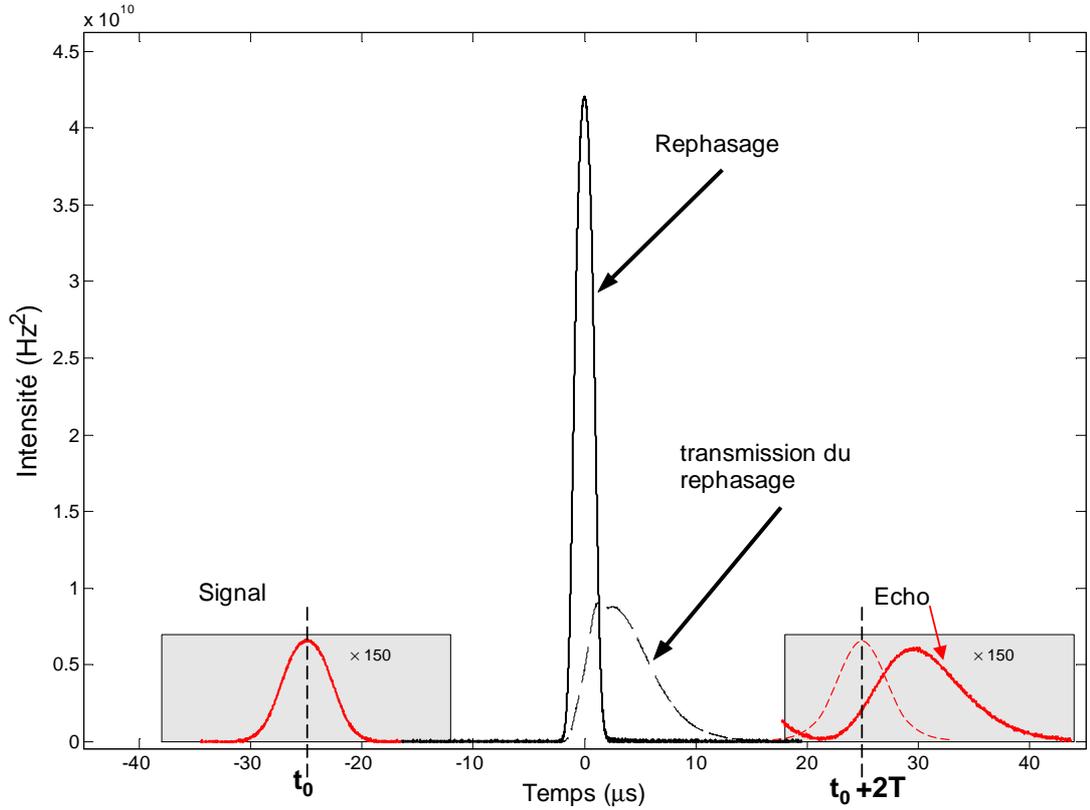


FIG. 2.10 — Séquence expérimentale complète d'écho à deux impulsions, obtenue pour une impulsion de rephasage d'aire 1.1π . Les impulsions de signal et d'écho ont été agrandies 150 fois. Par ailleurs, l'intensité des impulsions est donnée en terme de fréquences de Rabi au carré, quantité accessible expérimentalement. Les impulsions en entrée de cristal ont une durée (écart-type de l'enveloppe gaussienne) de $2.1\mu\text{s}$ pour le signal, et de $0.8\mu\text{s}$ pour le rephasage. On représente également la transmission de l'impulsion de rephasage (en unités arbitraires), afin de voir l'étirement temporel (d'un facteur 4 environ), le retard (de $2.5\mu\text{s}$ environ), et la déformation de l'enveloppe liés à la propagation cohérente. L'impulsion en pointillés rouges représente l'écho tel qu'attendu par la théorie du chapitre précédent. On observe deux choses importantes. D'une part, les effets de propagation font que le pied de l'impulsion de rephasage n'est atténué que d'un facteur de l'ordre de 10^{-3} (mesuré sur la courbe de transmission) par rapport au maximum quand on ouvre la fenêtre temporelle de détection de l'écho. Or le rapport des puissances entre les impulsions de rephasage et de signal est de 4.10^3 (atténuation de 36 dB). La seule réjection du rephasage étant due au filtrage spatial par la fibre de détection, son intensité est donc simplement divisée par $(w_R/w_S)^2 = 4$. C'est pourquoi l'intensité du pied de l'impulsion de rephasage apparaissant à $18\mu\text{s}$ est du même ordre de grandeur que celle de l'écho.

D'autre part, l'écart entre l'écho théorique attendu et l'écho observé s'explique aussi par la déformation temporelle de l'impulsion de rephasage au cours de sa propagation. En effet, son retard explique celui de l'écho (T augmente pour les atomes en sortie de cristal), et son allongement implique que la condition de recouvrement spectral n'est plus satisfaite (toujours pour les atomes en sortie de cristal). Il en résulte que l'écho est également étiré.

de rephasage en sortie de cristal est comparable à celle de l'impulsion signal. En réduisant la largeur spectrale de la seconde impulsion, cet étirement nuit à l'uniformité de la remise en phase des ions sélectionnés par l'impulsion signal. Les ions situés sur les bords de l'intervalle spectral défini par l'impulsion signal ne sont pas remis en phase par la seconde impulsion. De l'allongement de l'écho on déduit que le nombre d'ions participant à l'écho est réduit d'un facteur 1,6 par rapport au nombre d'ions initialement sélectionnés. Comme l'écho varie de façon quadratique avec le nombre d'émetteurs, on en conclut qu'en raison

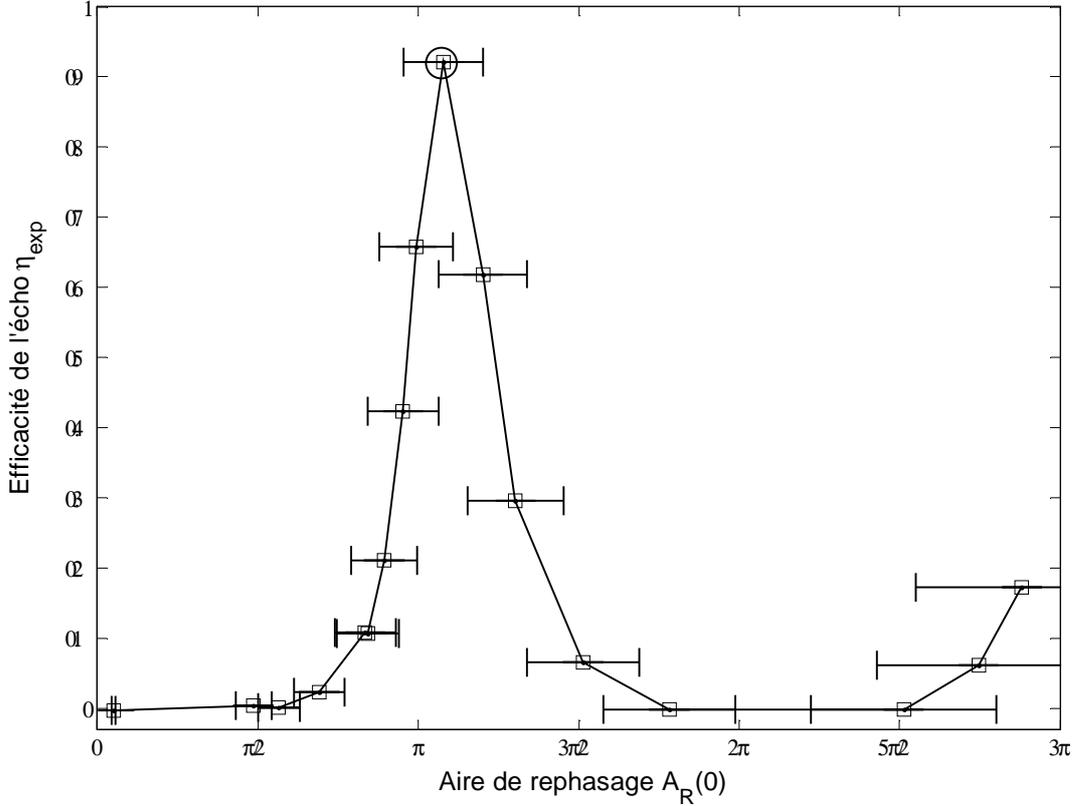


FIG. 2.11 – Efficacité de l'écho η_{exp} en fonction de l'aire de rephasage entrante $A_R(0)$. Le maximum d'efficacité est obtenu pour $A_R(0) = 1.1\pi$, et vaut 92%. Les barres d'erreur caractérisant l'incertitude sur $A_R(0)$ proviennent d'une estimation de la variation de recouvrement spatial des faisceaux. Il en résulte une variation de l'intensité du faisceau de rephasage sur la zone excitée par le faisceau de signal, qui entraîne une incertitude de 11% sur $A_R(0)$.

de l'étirement de l'impulsion de remise en phase, l'écho est réduit d'un facteur 2,6 environ. Le retard d'environ $5\mu s$ du maximum de l'écho par rapport à la position attendue découle lui aussi de l'étirement temporel de l'impulsion de remise en phase, dont le barycentre temporel se trouve ainsi retardé.

On réduit ainsi le désaccord entre théorie et expérience à un facteur 6 environ. Parmi les autres causes de dégradation du signal figure un phénomène que nous évoquons dans la Ref. [14] et que nous rappelons dans la section 1.4.1. Il s'agit de "l'épluchage" du faisceau de remise en phase au cours de sa propagation. Cet effet se manifeste en particulier lorsque l'aire est voisine de π sur l'axe du faisceau. Alors, tandis que la région centrale du faisceau se propage sans atténuation de l'aire mais en s'étirant temporellement, la périphérie du faisceau est simplement absorbée, ne conservant ni son aire initiale, ni son énergie. Cela se traduit donc à la fois par une réduction du diamètre du faisceau de l'onde rephasante

et par une distorsion temporelle de celle-ci en fonction de la distance radiale. Cet effet intervient probablement dans notre situation où, rappelons le, le diamètre du faisceau de rephasage ne dépasse celui du faisceau signal que d'un facteur de l'ordre de $\sqrt{2}/2$ aux extrémités du cristal.

Le profil temporel de l'impulsion de rephasage, observé sur la Fig. 2.10, apporte enfin des éléments de réponse quant au brouillage éventuel d'un signal d'écho très faible par la queue d'une impulsion π étirée. Sur cette figure, la queue de l'impulsion π apparaît juste avant l'écho. Son intensité est alors réduite d'un facteur de l'ordre de 10^3 par rapport à son maximum, atteint environ $2.5\mu\text{s}$ après le maximum à l'entrée dans l'échantillon. Cette atténuation est suffisante pour permettre la détection de l'écho relativement intense considéré dans notre expérience où, rappelons-le, l'aire du signal incident est de l'ordre de $\pi/10$. En revanche, un écho composé de quelques photons serait noyé dans la queue de l'impulsion de rephasage.

2.6 Conclusion

Pour conduire l'expérience d'écho nous nous efforçons de nous placer dans les conditions de l'étude théorique présentée dans le chapitre précédent. Cependant ces conditions ne sont pas entièrement satisfaites. En particulier nous nous heurtons aux effets liés à la déformation spatiale et temporelle de l'impulsion de remise en phase, lorsque son aire approche π . Cette déformation empêche la remise en phase complète des ions sélectionnés par l'impulsion signal et affaiblit le signal d'écho. Surtout, l'impulsion de rephasage s'étire jusqu'à l'instant d'émission de l'écho, rendant vaine toute tentative de détecter un signal au niveau du photon unique. Quoi qu'il en soit, nous avons vu au chapitre précédent que le bruit d'émission spontanée invalide le processus d'écho de photon à deux impulsions comme protocole de mémoire quantique. Ce bruit résulte directement de l'utilisation des impulsions rephasantes pour inverser l'évolution temporelle des cohérences optiques. Nous allons nous attacher dans le chapitre suivant à examiner les possibilités de protocoles rephasants qui ont été suggérées pour s'affranchir de ces impulsions.

Chapitre 3

Dépasser les limites de l'écho à deux impulsions : protocoles sans impulsion de rephasage

Sommaire

3.1	Introduction	57
3.2	Inverser la phase Doppler sans exciter la transition de stockage	58
3.3	Contrôle de l'élargissement inhomogène optique par effet Stark	61
3.3.1	Principe de la remise en phase par effet Stark	61
3.3.2	Temps de stockage, bande passante, opacité et modes spectro-temporels	63
3.3.3	Réalisations expérimentales	64
3.4	Peigne de fréquence atomique (<i>Atomic Frequency Comb</i>)	65
3.4.1	Echo de photon accumulé et peigne de fréquence	65
3.4.2	Propagation vers l'avant à travers un filtre périodique	66
3.4.3	Temps de stockage, bande passante, opacité et modes spectro-temporels	69
3.5	Conclusion	70

3.1 Introduction

L'écho à deux impulsions apparaît inadapté à la réalisation d'une mémoire quantique. L'impulsion intense utilisée pour la remise en phase des dipôles pose en particulier problème. La difficulté ne tient pas tant à la puissance de l'impulsion, qu'au fait qu'elle interagit fortement avec de nombreux atomes. Tout ceci ne remet

cependant pas en cause l'utilisation de processus rephasants dans une mémoire quantique.

Nous passons en revue trois approches proposées au cours des dix dernières années pour éviter l'excitation intense de la transition de stockage. La première pose d'emblée l'ensemble des aspects du problème mais n'apporte de solution que dans le cas d'une vapeur atomique. La seconde, bien adaptée aux milieux solides, fait appel au contrôle des phases atomiques par effet Stark. La dernière, dérivée de l'écho de photon stimulé à partir d'un réseau spectral accumulé, s'applique elle aussi aux solides.

3.2 Inverser la phase Doppler sans exciter la transition de stockage

La remise en phase des cohérences optiques, sans excitation de la transition de stockage par une impulsion intense, est proposée pour la première fois par S.A. Moiseev et S. Kröll en 2001 [24]. Le protocole s'appuie sur le lien entre la phase spatiale et la phase Doppler. Il ne s'applique donc qu'aux gaz où l'élargissement inhomogène des raies d'absorption est produit par l'effet Doppler.

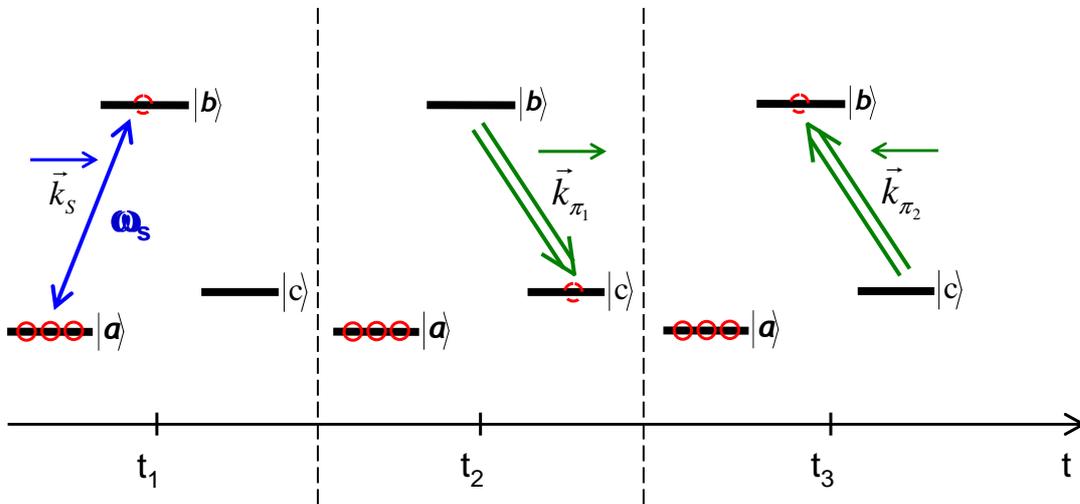


FIG. 3.1 – Séquence du protocole de stockage et restitution avec élargissement inhomogène Doppler.

Le protocole met en jeu un gaz d'atomes à trois niveaux $\{|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle\}$ (cf. fig. 3.1). Tous les atomes sont initialement préparés dans l'état $|a\rangle$. L'état $|c\rangle$ est donc totalement dépeuplé. On suppose que le milieu est très absorbant sur la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$ tout en restant totalement transparent à la fréquence de la transition $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$. Le milieu peut satisfaire cette propriété si l'écart d'énergie des états $|a\rangle$ et $|c\rangle$ est très grand par rapport

à l'élargissement Doppler. Alternativement, la propriété est satisfaite si, en choisissant la polarisation de la lumière incidente, on peut exciter sélectivement une seule des deux transitions $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$ et $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$. Quoi qu'il en soit, l'écart d'énergie entre $|a\rangle$ et $|c\rangle$ reste très inférieur à l'énergie des transitions optiques $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$ et $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$.

À l'instant t_1 , le gaz est traversé par une impulsion signal qui se propage dans la direction (Oz) avec un vecteur d'onde de module k . L'impulsion, accordée sur la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$, donne naissance à la cohérence optique ρ_{ab} dans laquelle s'imprime la phase spatiale kz . En raison de leur mouvement de translation, les atomes de vitesse longitudinale v ont, au point z , à l'instant t , la phase spatiale $\phi_{ab}(v, z, t)$ qu'ils avaient au point $z - v(t - t_1)$, où ils se trouvaient à l'instant t_1 :

$$\phi_{ab}(v, z, t) = k[z - v(t - t_1)], \quad (3.1)$$

L'élargissement Doppler kv de la transition se manifeste donc à travers la phase spatiale. La densité de polarisation au point z , résultante de l'ensemble des dipôles de transition en ce point, s'annule par interférence des différentes classes de vitesse au bout d'un temps de l'ordre de $(k\bar{v})^{-1}$, où \bar{v} représente la vitesse quadratique moyenne. À l'instant t_2 , puis à l'instant t_3 , on applique successivement deux impulsions d'aire π , accordées à la transition optique $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$. Ces deux impulsions ont pour fonction d'inverser la phase spatiale imprimée aux atomes. En raison du faible écart d'énergie entre les états $|a\rangle$ et $|c\rangle$, les vecteurs d'onde des différentes impulsions ont tous le même module k . L'impulsion appliquée en t_2 se propage dans le même sens que l'impulsion signal. Elle convertit la cohérence optique ρ_{ab} en cohérence Raman ρ_{ac} . Du même coup, elle ajoute $-kz$ à la phase spatiale qui devient $\phi_{ac}(v, z, t) = -kv(t_2 - t_1)$. Comme cette phase ne dépend pas de z , elle est insensible au mouvement atomique. L'impulsion appliquée en t_3 reconstruit la cohérence optique à partir de la cohérence Raman. Se propageant dans le sens opposé aux deux premières impulsions, elle ajoute à nouveau $-kz$ à la phase spatiale qui, à l'instant t_3 , s'écrit $\phi_{ab}(v, z, t_3) = -kz - kv(t_2 - t_1)$. Comme précédemment, cette phase évolue sous l'effet du mouvement des atomes et devient à l'instant t :

$$\phi_{ab}(v, z, t) = -kz + kv[t - t_3 - (t_2 - t_1)], \quad (3.2)$$

A l'instant $t = t_3 + t_2 - t_1$, la phase Doppler s'annule et tous les dipôles au point z se retrouvent en phase. Ils créent alors une polarisation macroscopique qui donne naissance à un écho de photon. Ce dernier se propage dans le sens opposé à l'impulsion signal, vers l'entrée du milieu mémoire.

À la différence de l'impulsion rephasante rencontrée dans les chapitres précédents, les impulsions π excitent ici des transitions entre des niveaux vides. Tous les atomes se trouvent en effet initialement dans l'état $|a\rangle$. Les impulsions π ne peuplent donc pas mas-

sivement l'état excité $|b\rangle$, comme c'était le cas dans l'écho à deux impulsions. Par ailleurs, comme elles traversent un milieu transparent, ces impulsions se propagent sans se déformer, sans s'étirer, au contraire de ce qui se produit dans un milieu fortement absorbant. Le signal d'écho est donc cette fois détecté sur fond noir, sans bruit de fluorescence, ni résidu d'impulsion rephasante.

Il faut souligner que ces impulsions π ne convertissent pas la cohérence ρ_{ab} en son conjugué ρ_{ba} , comme le fait l'impulsion rephasante dans le processus d'écho à deux impulsions. Elles ajoutent seulement $-2kz$ à la phase de la cohérence ρ_{ab} . C'est le lien particulier entre phase spatiale et phase Doppler qui permet de compenser par cette voie l'élargissement inhomogène.

Par rapport à l'écho à deux impulsions, ce protocole allonge aussi le temps de stockage puisque, si l'information transite par la cohérence optique, elle est finalement portée par la cohérence Raman du fondamental, ρ_{ac} , de durée de vie généralement très supérieure à celle de ρ_{ab} et insensible au déphasage Doppler, comme on l'a vu plus haut. Le temps de stockage est alors essentiellement limité par le temps de transit des atomes dans le faisceau lumineux. Le stockage de l'information dans la cohérence Raman est commun à tous les protocoles de mémoire quantique qui mettent en oeuvre un système de niveaux en Λ , telle que la transparence induite électromagnétiquement (EIT) [25, 26, 7, 27].

Par-dessus tout, ce protocole met en évidence une propriété remarquable des milieux absorbants, simple conséquence des lois de l'électromagnétisme, mais qui était, semble-t-il, passée inaperçue jusque-là. En effet, la résolution de l'équation d'onde montre que le signal capturé est reconstruit vers l'arrière avec une efficacité de 100%, pourvu que le milieu soit complètement absorbant. Cette propriété n'est pas propre au protocole particulier que nous considérons ici. Il suffit qu'on parvienne à remettre en phase les cohérences atomiques de façon à ce que le signal reconstruit soit émis vers l'arrière, c'est à dire vers la face d'entrée du milieu. Sans entrer dans les détails du calcul, on comprend l'origine d'une aussi grande efficacité en observant que le signal qui remonte vers la face d'entrée présente en chaque point l'amplitude et la phase adaptées pour ramener chaque atome excité dans l'état fondamental. Il est en effet d'autant plus intense qu'il se rapproche de la face d'entrée, c'est à dire de la région où le signal initial était lui même le plus fort. Ainsi le signal reconstruit récupère-t-il toute l'énergie emmagasinée dans le milieu. L'amplitude du signal croît de façon exponentielle à mesure qu'il progresse vers la face d'entrée. Cependant, comme le milieu n'est pas inversé, il ne s'agit pas d'un phénomène d'amplification par émission stimulée, mais d'un effet de propagation cohérente.

On peut aussi vérifier que l'inversion simultanée de la phase spatiale et de la phase inhomogène est formellement équivalente au renversement du temps, ce qui explique la reconstruction parfaitement efficace vers l'arrière [28].

Aussi séduisant soit-il, ce protocole n'a pas encore été démontré expérimentalement.

Cependant, en montrant que l'obstacle de l'impulsion rephasante intense n'était pas incontournable, et qu'une efficacité de restitution très élevée pouvait être atteinte, sans amplification, dans un milieu très absorbant, il a considérablement stimulé les recherches sur les processus rephasants dans le cadre des mémoires quantiques pour la lumière.

3.3 Contrôle de l'élargissement inhomogène optique par effet Stark

L'utilisation d'un gaz comme mémoire quantique se heurte immédiatement à la limitation de durée imposée par le temps de transit des atomes dans le faisceau lumineux. Cette limitation n'est pas fondamentale dans le cas de la transparence induite électromagnétiquement (EIT). En effet, le refroidissement des atomes par laser augmente considérablement le temps de transit, tout en améliorant l'efficacité du processus EIT. Il en va tout autrement pour les processus fondés sur le rephasage Doppler. L'élargissement inhomogène d'origine Doppler fixe alors la bande passante de capture. Le refroidissement laser la réduirait à zéro. Le temps de transit apparaît alors comme une limite fondamentale.

Les systèmes solides offrent une approche alternative. Les centres absorbants étant immobiles, le temps de transit n'intervient plus. L'élargissement inhomogène provient des interactions avec la matrice solide et présente une très large bande passante de capture. Cependant, comme on perd du même coup le lien entre la phase spatiale et la phase inhomogène, le protocole étudié dans le paragraphe précédent n'est pas praticable.

Pour renverser la phase inhomogène, tout en évitant l'excitation intense de la transition de capture, Nilsson et Kröll [29] ainsi que Sellars et Manson [30] proposent de créer artificiellement l'élargissement inhomogène à l'aide d'un champ électrique externe qu'on peut inverser à volonté. Ce mode de stockage et reconstruction est appelé *Controlled Reversible Inhomogeneous Broadening* (CRIB) par ses initiateurs.

3.3.1 Principe de la remise en phase par effet Stark

Un champ électrique externe peut servir à la remise en phase des dipôles si la fréquence de transition est déplacée par effet Stark. Pour cela les centres absorbants doivent posséder un moment dipolaire électrique permanent, et ce moment doit être différent dans l'état fondamental et dans l'état excité. On peut alors modifier la fréquence de résonance de la transition atomique par effet Stark à l'aide d'un champ électrique statique \vec{E}_S . Le décalage de fréquence induit par effet Stark s'écrit :

$$\Delta\omega_S = \frac{\chi(\vec{\mu}_a^p - \vec{\mu}_b^p)\vec{E}_S}{\hbar}, \quad (3.3)$$

où $\chi = (\varepsilon + 2)/3$, ε représentant la constante diélectrique du milieu atomique [31].

Les atomes impliqués dans le processus occupent un étroit profil d'absorption de largeur γ . Sur cet intervalle, l'opacité vérifie $\alpha_0 L \gg 1$. La largeur γ , de l'ordre de 1 MHz, est très inférieure à celle de la raie d'absorption à l'état naturel. Une étape de préparation est donc nécessaire. Il faut rendre le matériau transparent en dehors de l'intervalle de largeur γ . A cette fin, on transporte les atomes indésirables vers un état métastable non couplé au signal optique incident. On dispose pour cela de techniques éprouvées de *hole-burning* spectral par pompage optique, sur lesquelles nous reviendrons (voir le paragraphe de 4.2.3 sur la séquence de préparation).

Si les dipôles permanents sont orientés de façon aléatoire, le champ électrique externe produit un élargissement inhomogène, redistribuant les fréquences de transition sur un intervalle Γ , proportionnel au champ appliqué. Un champ suffisamment fort permet de produire un élargissement $\Gamma \gg \gamma$. Le milieu est alors prêt pour capturer une impulsion de largeur spectrale comprise entre γ et Γ .

Après excitation par l'impulsion signal à l'instant t_1 , les cohérences $\rho_{ab}(\Delta)$ développent une phase inhomogène $\Delta(t - t_1)$. L'inversion du champ externe à l'instant t_2 change le signe du désaccord Δ . Comme dans le cas de l'écho de photon classique, toutes les cohérences se retrouvent en phase à l'instant $t = 2t_2 - t_1$. Elles donnent naissance à une polarisation macroscopique qui émet une impulsion semblable au signal initial, au renversement temporel près. L'équation de formation de l'écho à deux impulsions, établie plus haut (Eq. 1.31), reste valide, moyennant quelques aménagements. Tout d'abord, on doit remplacer le coefficient d'absorption initial α_0 par le paramètre $\alpha_S = \alpha_0 \gamma / \Gamma$, qui reflète la redistribution des atomes sur la largeur inhomogène produite par effet Stark. D'autre part, comme l'effet Stark ne modifie pas la répartition des atomes entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$, on remplace $\cos[A_R(z)]$ par 1, dans le premier terme à droite de l'Eq. 1.31, mais comme le renversement Stark est parfaitement efficace, on remplace $\cos[A_R(z)]$ par -1 dans le second membre à droite de cette équation. Le champ reconstruit satisfait alors l'équation :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_E(z, t)}{\partial z} = -\frac{\alpha_S}{2} (\mathcal{E}_E(z, t) - 2e^{-\gamma_{ab}(t-t_1) - \alpha_S z/2} \mathcal{E}(0, 2t_2 - t)) , \quad (3.4)$$

dont la résolution donne l'expression du champ à la sortie du milieu actif, en $z = L$:

$$\mathcal{E}_E(L, t) = \alpha_S L e^{-\gamma_{ab}(t-t_1) - \alpha_S L/2} \mathcal{E}(0, 2t_2 - t) . \quad (3.5)$$

Il s'ensuit que l'efficacité de restitution atteint une valeur maximale de 54%, pour $\alpha_S L = 2$.

La réabsorption du signal reconstruit empêche d'atteindre une efficacité plus élevée.

Cependant, on peut en principe atteindre une efficacité de 100% en combinant la procédure d'inversion Stark avec la reconstruction vers l'arrière que nous avons rencontrée en Section 3.2. Pour y parvenir, il suffit d'ajouter aux états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ un troisième état $|c\rangle$, énergétiquement proche de $|a\rangle$ et relié à $|b\rangle$ par une transition optique. Le niveau $|c\rangle$ ayant été vidé au préalable, on applique deux impulsions π successives, se propageant en sens contraire, après l'excitation de ρ_{ab} par l'impulsion signal. Ces impulsions ajoutent à la phase de ρ_{ab} la quantité $-2kz$ qui détermine la reconstruction vers l'arrière. L'efficacité tend alors vers 100%, pourvu que $\alpha_S L \gg 1$.

3.3.2 Temps de stockage, bande passante, opacité et modes spectro-temporels

Le temps de stockage semble limité par γ , largeur de l'intervalle spectral occupé par les atomes avant élargissement par effet Stark. En effet le déphasage inhomogène qui se forme sur l'intervalle γ n'est pas compensé par inversion du champ externe. Le temps de stockage est donc inférieur à γ^{-1} [28]. On peut en principe réduire γ jusqu'à γ_{ab} , largeur homogène de la transition. Cependant, augmenter ainsi le temps de stockage affecte l'efficacité, car l'opacité $\alpha_S L = \alpha_0 L \gamma / \Gamma$ est proportionnelle à γ .

La reconstruction vers l'arrière, et la mise en œuvre du troisième état $|c\rangle$, posent le problème du temps de stockage en termes différents. L'information capturée sous forme de cohérence optique ρ_{ab} est en effet convertie en cohérence Raman ρ_{ac} de grande durée de vie par la première impulsion π . Dans un gaz, cette conversion stoppe en même temps le déphasage inhomogène en raison de la quasi-égalité des vecteurs d'onde sur les transitions $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$ et $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$. Dans un solide, il est aisé de débrancher le champ électrique statique, et de stopper ainsi à coup sûr le déphasage Stark, à la fois sur les transitions optique et Raman. Cependant, il subsiste en général un élargissement inhomogène sur la transition Raman, quelle que soit la valeur de γ , car les états $|a\rangle$ et $|c\rangle$ interagissent différemment avec la matrice solide. Du déphasage résiduel associé on peut encore avoir raison par les techniques de *refocalisation de spin* développées en RMN. Par exemple, pour remettre en phase les cohérences ρ_{ac} au bout d'un temps T , sans modifier la répartition des atomes entre $|a\rangle$ et $|c\rangle$, il suffit d'appliquer successivement deux impulsions radio-fréquence d'aire π aux instants $T/4$ et $3T/4$. Le temps de stockage est donc finalement limité seulement par la durée de vie de ρ_{ac} .

Si γ^{-1} ne fixe pas le temps de stockage, il n'est pas nécessaire que γ soit réduit au minimum et il semble possible de concilier un temps de stockage élevé avec une forte opacité, condition d'une bonne efficacité de restitution. Cependant, il faut noter que le rapport Γ/γ représente le nombre de canaux spectro-temporels disponibles, c'est-à-dire le nombre d'impulsions lumineuses qu'on peut stocker simultanément dans la mémoire. À

bande passante Γ fixée, il est inversement proportionnel à γ et donc à l'opacité $\alpha_S L$.

3.3.3 Réalisations expérimentales

Pour redistribuer uniformément les atomes sur l'intervalle Γ par effet Stark, nous avons dû faire l'hypothèse que les moments dipolaires permanents sont orientés de façon aléatoire. Ceci n'est vrai que dans une matrice amorphe, telle une fibre optique. Une étude approfondie de faisabilité a été menée dans les fibres de silice dopées en ions erbium trivalents, matériau de base des télécommunications optiques, sans toutefois permettre de tester le protocole CRIB [31, 32]. D'une part, la durée de vie de la cohérence optique reste trop courte pour une commutation aisée du champ électrique externe. Il faut réduire la température à 150mK dans un cryostat à diffusion pour atteindre une durée de vie de $3.8\mu\text{s}$, sous un champ magnétique de 2.2T. D'autre part, l'erbium n'offre pas le système en Λ requis pour un stockage dans la cohérence Raman.

De son côté, le groupe de Canberra propose une autre approche compatible avec les cristaux [30]. Au lieu d'appliquer un champ électrique uniforme au cristal tout entier, on fait varier linéairement ce champ en fonction de la coordonnée de propagation z . Ainsi, même si les dipôles permanents présentent tous la même orientation, le déplacement Stark devient fonction de z . Pour une valeur z de la coordonnée longitudinale, l'effet Stark ne produit pas d'élargissement inhomogène, seulement un déplacement, mais la résultante de ces déplacements locaux se traduit globalement par un élargissement du profil d'absorption intégré sur l'épaisseur du cristal. La phase inhomogène associée à cet élargissement est alors inversée par basculement du champ, comme dans le protocole CRIB. Après des premiers résultats modestes, et une efficacité de restitution de 10^{-6} seulement observée dans un cristal de 0.1 at.% $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, le protocole proposé se révèle de plus en plus performant : l'efficacité de restitution atteint successivement 15% dans un cristal de 0.05 at.% $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ [33], puis 45% [34] et enfin 69% [35].

Ces mesures sont effectuées vers l'avant, sur une transition à deux niveaux. L'observation d'une efficacité supérieure à 54% dans ces conditions montre bien que l'élargissement global produit par un gradient longitudinal du champ appliqué n'est pas équivalent à l'élargissement uniformément distribué que nous avons examiné en Section 3.3.1. Les auteurs australiens ont d'ailleurs vite réalisé l'originalité du processus dont ils sont les promoteurs et qu'ils ont appelé *Gradient Echo Memory* (GEM). Ils ont montré que l'efficacité pouvait atteindre 100% vers l'avant, dans un simple système à deux niveaux [36, 33]. Sans examiner le processus en détail, on peut noter que, à la différence du CRIB étudié en Section 3.3.1, il repose sur des variations brutales du coefficient d'absorption, aussi bien en fonction de la fréquence optique qu'en fonction de la position longitudinale.

Pour réaliser ces expériences, encore faut-il que les impuretés actives présentent un

dipôle électrique permanent. Lorsque les sites de substitution présentent une symétrie trop élevée, le dipôle permanent ne peut pas se construire. C'est le cas en particulier du cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ que nous avons utilisé pour les expériences d'écho à deux impulsions. Aucun vecteur ne peut en effet satisfaire l'invariance par rotation de π autour de trois axes orthogonaux imposés par la symétrie D_2 des sites, comme on peut aisément le vérifier. Nous avons cependant vérifié qu'un matériau tel que $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$, de plus faible symétrie, présente bien un dipôle électrique permanent, dépendant de l'état électronique, et pourrait donc convenir à la réalisation d'une mémoire GEM (voir [37] présenté en annexe C). Cependant, la réduction d'un ordre de grandeur de la durée de vie des cohérences optiques par rapport à $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ compliquerait significativement les conditions expérimentales, obligeant en particulier à commuter rapidement les champs électriques élevés requis par les protocoles Stark. Cette difficulté, jointe à la faible capacité multimode des protocoles Stark [38], nous ont incités à miser plutôt sur le protocole de Peigne de Fréquence Atomique, proposé au printemps 2008.

3.4 Peigne de fréquence atomique (*Atomic Frequency Comb*)

3.4.1 Echo de photon accumulé et peigne de fréquence

Le protocole appelé Peigne de Fréquence Atomique ou *Atomic Frequency Comb* (AFC) [39] découle directement du processus d'écho stimulé [40], ou plus précisément de la variante où l'écho est stimulé à partir d'un réseau spectral accumulé [41, 42].

Sous forme d'écho à trois impulsions, l'écho stimulé a été beaucoup sollicité dans les années 1990 pour la réalisation de mémoires optiques classiques [43, 44, 45]. L'information à stocker, portée par l'une des deux premières impulsions, est inscrite dans la distribution spectrale de la population de l'état fondamental de la transition de capture. Pour optimiser l'écho, on a recours à une impulsion sonde intense. Une telle procédure ne convient cependant pas pour une mémoire quantique. D'une part, une information quantique ne peut être sauvegardée dans une population, quantité dépourvue de phase. D'autre part, un champ intense ajoute du bruit lorsqu'il excite la transition de stockage, comme nous l'avons vu dans le cas de l'écho à deux impulsions.

Dans les refs. [41, 42], le profil d'absorption, élargi par un déplacement inhomogène des raies spectrales, est d'abord modifié par une séquence de paires d'impulsions séparées par un intervalle t_{12} . L'illumination répétée grave une structure périodique, un réseau spectral, dans le profil d'absorption. On programme ainsi une fonction de filtrage dans le milieu absorbant. Une impulsion sonde qui traverse le milieu ainsi préparé à l'instant t_3

donne naissance à un écho, émis à l'instant $t_3 + t_{12}$.

Vu sous l'angle du filtrage programmé, l'écho accumulé est abondamment utilisé dans le cadre du traitement classique du signal [46], en particulier pour l'analyse spectrale large bande d'un signal radiofréquence placé sur porteuse optique [47, 48, 49].

C'est précisément la programmation du filtrage qu'exploitent les auteurs du protocole AFC. Ils observent que la fonction de filtrage inscrite dans le profil d'absorption assure la formation d'un écho à partir de l'impulsion sonde, sans qu'il soit nécessaire de faire intervenir une impulsion intense de remise en phase. Renversant le schéma du stockage classique par écho stimulé, ils réalisent que dans une éventuelle mémoire quantique, l'information devra être portée par l'impulsion sonde et non par l'une des impulsions de gravure du filtre périodique. Encore faut-il pouvoir interroger la mémoire à volonté. Cela ne pose pas de problème particulier : il suffit de disposer d'une transition auxiliaire entre niveaux vides, qui permette de convertir temporairement la cohérence optique en cohérence Raman à l'aide d'impulsions π , comme nous l'avons déjà vu dans les sections 3.2 et 3.3.1. Si les impulsions π se propagent en sens contraire, on reconstruit par ailleurs le signal vers l'arrière, ce qui améliore considérablement l'efficacité.

Cependant, encore faut-il que l'écho se construise vers l'avant avec une bonne efficacité. Elle atteint 54% dans le cas du CRIB. Elle ne peut dépasser 13.5% dans le cas de l'écho accumulé, lorsque le filtre programmé présente un profil sinusoïdal. Il faut porter aussi au crédit des auteurs de l'AFC d'avoir observé que l'efficacité vers l'avant peut atteindre 54%, comme dans le cas du CRIB, si les régions opaques, périodiquement espacées, du profil d'absorption sont réduites à des dents très étroites par rapport à leur espacement. On s'écarte alors beaucoup du processus d'écho habituel, car le milieu devient presque transparent. Les effets de dispersion deviennent prépondérants par rapport à l'absorption, tout comme dans un phénomène de lumière lente [50].

L'efficacité se calcule aisément dans le cas d'un filtre sinusoïdal ainsi que dans celui d'un filtre à dents lorentzienne. Nous consacrons le paragraphe suivant au calcul de cette quantité, qui permet une interprétation quantitative de nos expériences d'écho AFC (cf. chapitre suivant).

3.4.2 Propagation vers l'avant à travers un filtre périodique

Dans le chapitre consacré à la théorie de l'écho à 2 impulsions, nous avons construit le signal, en Section 1.2.2, à partir d'une représentation microscopique du système, c'est-à-dire par combinaison de l'équation d'onde, dérivée des équations de Maxwell, et de l'équation de Bloch, décrivant l'interaction lumière-matière à l'échelle atomique. Une approche macroscopique suffit pour étudier la propagation d'une onde en régime linéaire à travers un milieu seulement caractérisé par son profil d'absorption.

Dans l'hypothèse d'une réponse linéaire du milieu matériel à l'excitation optique, la densité de polarisation macroscopique s'écrit :

$$\hat{P}(z, \omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \hat{E}(z, \omega) , \quad (3.6)$$

où $\chi(\omega)$ représente la susceptibilité électrique et où on définit la transformation de Fourier par les relations :

$$\hat{f}(\omega) = \int dt f(t) e^{-i\omega t} \quad (3.7)$$

$$f(t) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega \hat{f}(\omega) e^{i\omega t} . \quad (3.8)$$

Substituant cette expression dans l'Eq. 1.10, et utilisant l'amplitude pour une onde progressive vers les z croissants définie par l'Eq. 1.1, on obtient l'équation d'onde sous la forme :

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}(z, \omega - \omega_L)}{\partial z} + \frac{i}{2} k \chi(\omega) \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega - \omega_L) = 0. \quad (3.9)$$

La solution s'écrit :

$$\hat{\mathcal{E}}(z, \omega - \omega_L) = \hat{\mathcal{E}}(0, \omega - \omega_L) e^{-\frac{i}{2} k z \chi(\omega)} \quad (3.10)$$

Nous devons maintenant spécifier la forme de la susceptibilité. Nous considérons successivement des filtres sinusoïdal et lorentzien. Ce dernier représente une alternative au peigne à dents gaussiennes proposé par [39], et sera exploité au chapitre suivant.

3.4.2.1 filtre sinusoïdal

On affecte au coefficient d'absorption la structure sinusoïdale :

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha_0}{2} (1 + \cos[(\omega - \omega_0)t_{12}]) , \quad (3.11)$$

qui atteint périodiquement la valeur maximale α_0 en $\omega = \omega_0 + 2n\pi/t_{12}$. Le contraste, égal à l'unité, suppose que la période du filtre est très supérieure à la largeur homogène de la transition absorbante.

En notant que la partie imaginaire de $\chi(\omega)$ dépend directement de $\alpha(\omega)$ par la relation :

$$\text{Im} [\chi(\omega)] = -\frac{1}{k} \alpha(\omega) \quad (3.12)$$

et que les parties réelle et imaginaire de $\chi(\omega)$ sont associées par la relation de dispersion :

$$\operatorname{Re}[\chi(\omega)] = \frac{1}{\pi} \int d\omega' \frac{\operatorname{Im}[\chi(\omega')]}{\omega' - \omega}, \quad (3.13)$$

on obtient aisément l'expression de $\chi(\omega)$:

$$\chi(\omega) = -\frac{i}{2k} \alpha_0 (1 + e^{-i(\omega - \omega_0)t_{12}}) \quad (3.14)$$

On vérifie que la fonction de réponse :

$$R(t) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega \chi(\omega) e^{i\omega t}, \quad (3.15)$$

obtenue par transformation de Fourier de la susceptibilité, s'annule pour $t < 0$, comme le requiert la causalité, exprimée dans le domaine des fréquences par les relations de dispersion. On substitue l'Eq. 3.14 dans l'Eq. 3.10 :

$$\hat{\mathcal{E}}(z, \omega - \omega_L) = \hat{\mathcal{E}}(0, \omega - \omega_L) \sum_{p=0}^{\infty} \frac{1}{p!} \left(\frac{-\alpha_0 z}{4} \right)^p (1 + e^{-i(\omega - \omega_0)t_{12}})^p, \quad (3.16)$$

puis on revient au profil temporel par transformation de Fourier :

$$\mathcal{E}(z, t) = \left(\mathcal{E}(0, t) - \frac{\alpha_0 z}{4} e^{i(\omega_0 - \omega_L)t_{12}} \mathcal{E}(0, t - t_{12}) + \dots \right) e^{-\frac{\alpha_0 z}{4}}, \quad (3.17)$$

où les points de suspension représentent les termes proportionnels à $\mathcal{E}(0, t - pt_{12})$, avec $p > 1$ un entier. On observe donc bien l'apparition d'un écho, réplique de l'impulsion incidente retardée de t_{12} . On note que l'écho présente un déphasage $(\omega_0 - \omega_L)t_{12}$ par rapport à la transmission directe, non retardée. L'efficacité en intensité de l'écho :

$$\eta(\alpha_0 z) = \left(\frac{\alpha_0 z}{4} \right)^2 e^{-\frac{\alpha_0 z}{2}} \quad (3.18)$$

atteint, comme annoncé, un maximum de 13,5% pour $\alpha_0 z = 4$.

3.4.2.2 filtre en forme de peigne périodique à dents Lorentziennes

Le profil d'absorption prend maintenant la forme¹ :

$$\alpha(\omega) = \alpha_0 \frac{\tanh(\theta/2)}{\theta/2} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0 - 2n\pi/t_{12})^2 + \gamma^2} \quad (3.19)$$

où $\theta = \gamma t_{12}$. Comme précédemment, $\alpha(\omega)$ atteint périodiquement la valeur maximale α_0 en $\omega = \omega_0 + 2n\pi/t_{12}$. La procédure déjà suivie dans le cas d'un filtre sinusoïdal permet de déduire $\chi(\omega)$ de $\alpha(\omega)$. On obtient :

¹pour normaliser $\alpha(\omega)$ on utilise la relation $\sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{1}{n^2 + a^2} = \frac{\pi}{a} \coth(a\pi)$

$$\chi(\omega) = -\frac{\alpha_0 \tanh(\theta/2)}{k} \frac{1}{\theta/2} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{\gamma}{\omega - \omega_0 - 2n\pi/t_{12} - i\gamma}. \quad (3.20)$$

La susceptibilité du filtre sinusoïdal s'exprime en fonction du facteur de phase $e^{-i(\omega-\omega_0)t_{12}}$ qui, par transformation de Fourier, se traduit par le retard t_{12} à l'émission de l'écho. Pour suivre le même canevas, nous notons que $\chi(\omega)$, fonction périodique de ω , se développe en série de Fourier sous la forme :

$$\chi(\omega) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n e^{-in\omega t_{12}}. \quad (3.21)$$

où $c_n = \frac{t_{12}}{2\pi} \int_0^{2\pi/t_{12}} d\omega \chi(\omega) e^{in\omega t_{12}}$. On obtient aisément :

$$c_n = -i \frac{2\alpha_0}{k} \tanh(\theta/2) e^{in\omega_0 t_{12}} \begin{cases} e^{-n\theta} & (n > 0) \\ \frac{1}{2} & (n = 0) \\ 0 & (n < 0) \end{cases} \quad (3.22)$$

Substituant les Eqs. 3.21 et 3.22 dans l'Eq. 3.10, puis revenant dans le domaine temporel par transformation de Fourier, on obtient finalement :

$$\mathcal{E}(z, t) = (\mathcal{E}(0, t) - \alpha_0 z \tanh(\theta/2) e^{i(\omega_0 - \omega_L)t_{12}} e^{-\theta} \mathcal{E}(0, t - t_{12}) + \dots) e^{-\alpha_0 z \tanh(\theta/2)/2}, \quad (3.23)$$

où les points de suspension représentent toujours les termes proportionnels à $\mathcal{E}(0, t - pt_{12})$, avec $p > 1$ un entier. Le développement est facilité par l'annulation des c_n de $n < 0$. Le signal retardé est émis avec une efficacité en intensité :

$$\eta(\alpha_0 z, \theta) = (\alpha_0 z \tanh(\theta/2))^2 e^{-2\theta - \alpha_0 z \tanh(\theta/2)}. \quad (3.24)$$

Lorsque $\theta \ll 1$, on peut remplacer $\tanh(\theta/2)$ par $\theta/2$. Le maximum, pour $\alpha_0 z$ donné, s'écrit :

$$\eta_{max}(\alpha_0 z) = 4e^{-2} \left(\frac{\alpha_0 z/4}{1 + \alpha_0 z/4} \right)^2 \quad (3.25)$$

Il est atteint en $\theta = 1/(1 + \alpha_0 z/4)$, et approche 54% lorsque $\alpha_0 z \gg 4$.

3.4.3 Temps de stockage, bande passante, opacité et modes spectro-temporels

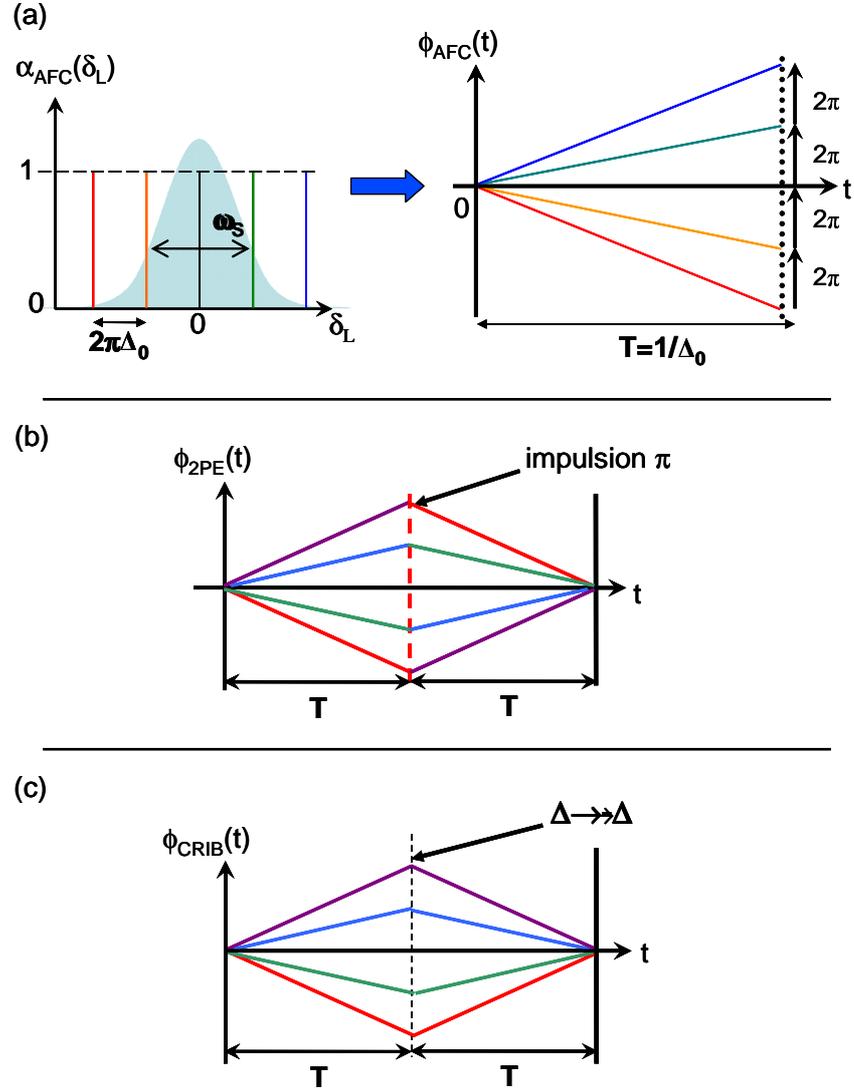
Pour approcher de l'efficacité de restitution maximum, il suffit donc que l'opacité des dents du peigne dépasse largement 4. Cette condition ne dépend ni de la bande

passante, ni du nombre d'impulsions successives stockées dans le matériau. En effet, pour un temps de stockage t_{12} donné, on augmente la bande passante en augmentant le nombre de dents du peigne d'absorption. Cette opération n'a aucune incidence sur l'optimisation de la largeur des dents, imposée par la condition $\gamma = 1/[t_{12}(1 + \alpha_0 L/4)]$. Le nombre de modes spectro-temporels accessible correspond au nombre d'impulsions qu'on peut faire tenir dans l'intervalle t_{12} . Comme la durée de chaque impulsion ne peut être inférieure à l'inverse de la bande passante, donnée par le produit du nombre N de dents par leur période $2\pi/t_{12}$, le nombre de modes est simplement égal à N . Il n'est en aucune façon relié à l'efficacité, au contraire de la situation rencontrée dans le protocole CRIB, où l'augmentation du nombre de modes dégrade l'efficacité de restitution par l'intermédiaire de l'opacité redistribuée, $\alpha_S L$, d'un facteur de l'ordre de $1/N$.

3.5 Conclusion

En évitant de coupler, au cours du stockage, des impulsions intenses à des transitions fortement peuplées, les trois approches étudiées évitent les problèmes de bruit que nous avons rencontrés dans le cas de l'écho à deux impulsions. Une efficacité de restitution proche de 100% semble par ailleurs accessible.

La mise en oeuvre expérimentale du protocole AFC apparaît quasi-immédiate dans la continuité de notre étude sur l'écho à deux impulsions dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Ce protocole ne requiert ni dipôle permanent ni champ extérieur, à la différence du CRIB. Il repose sur la modification de la distribution spectrale des ions, procédure que nous connaissons bien et dont nous allons montrer qu'elle est favorisée par la grande durée de vie des niveaux de spin de l'ion Tm^{3+} . Enfin, avec une opacité initiale modeste de l'ordre de 5, comme celle dont nous disposons, nous pouvons espérer dépasser une efficacité de 10%, valeur considérable pour un écho de photon, qui plus est sans impulsion de remise en phase.



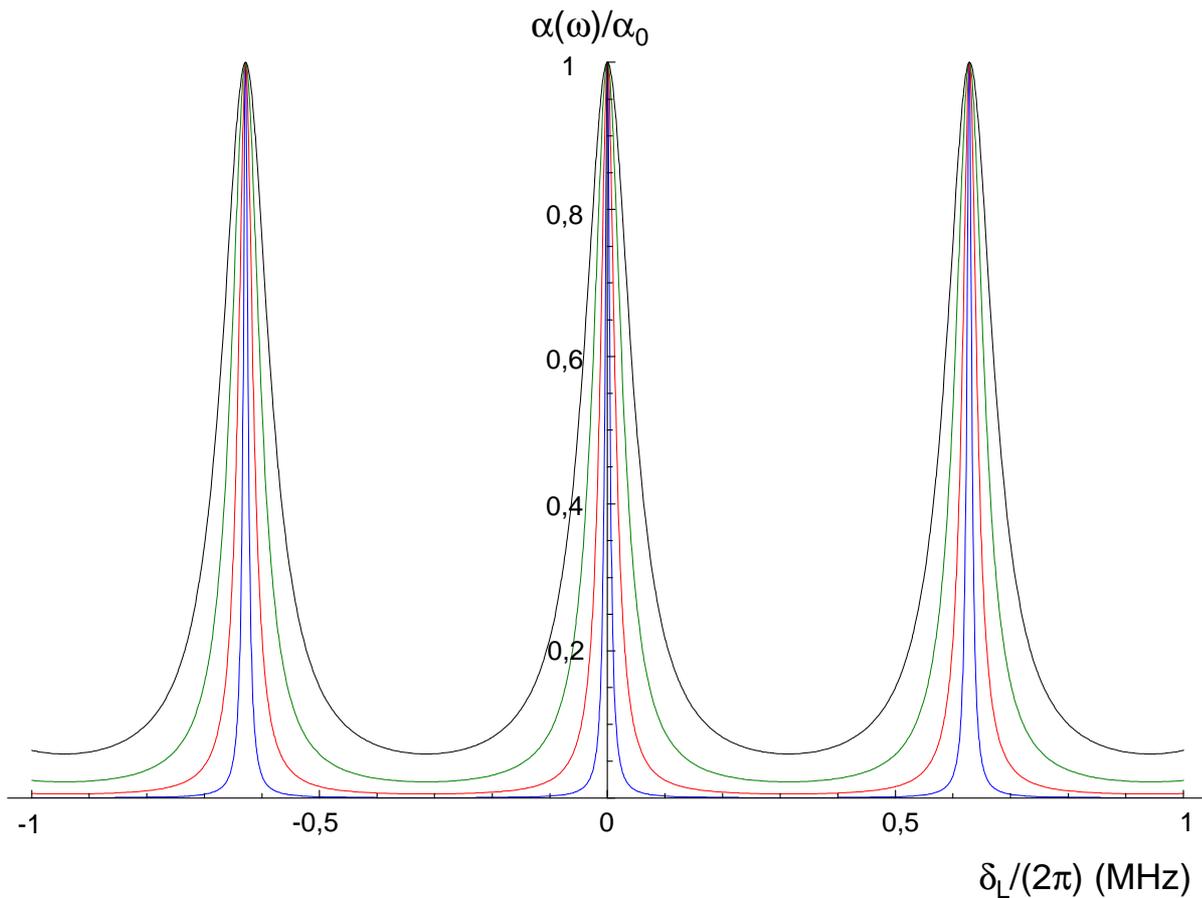


FIG. 3.3 – Allure de peignes à dents lorentziennes en fonction du facteur de forme $\theta = \gamma t_{12}$. On fixe t_{12} à $1,5\mu s$, et on a : $\theta = 0,05$ pour la courbe bleue, $\theta = 0,15$ pour la courbe rouge, $\theta = 0,3$ pour la courbe verte et $\theta = 0,5$ pour la courbe noire. On remarque que la variation de largeur des dents est associée à une variation du contraste du peigne : plus γ diminue, plus le peigne est contrasté.

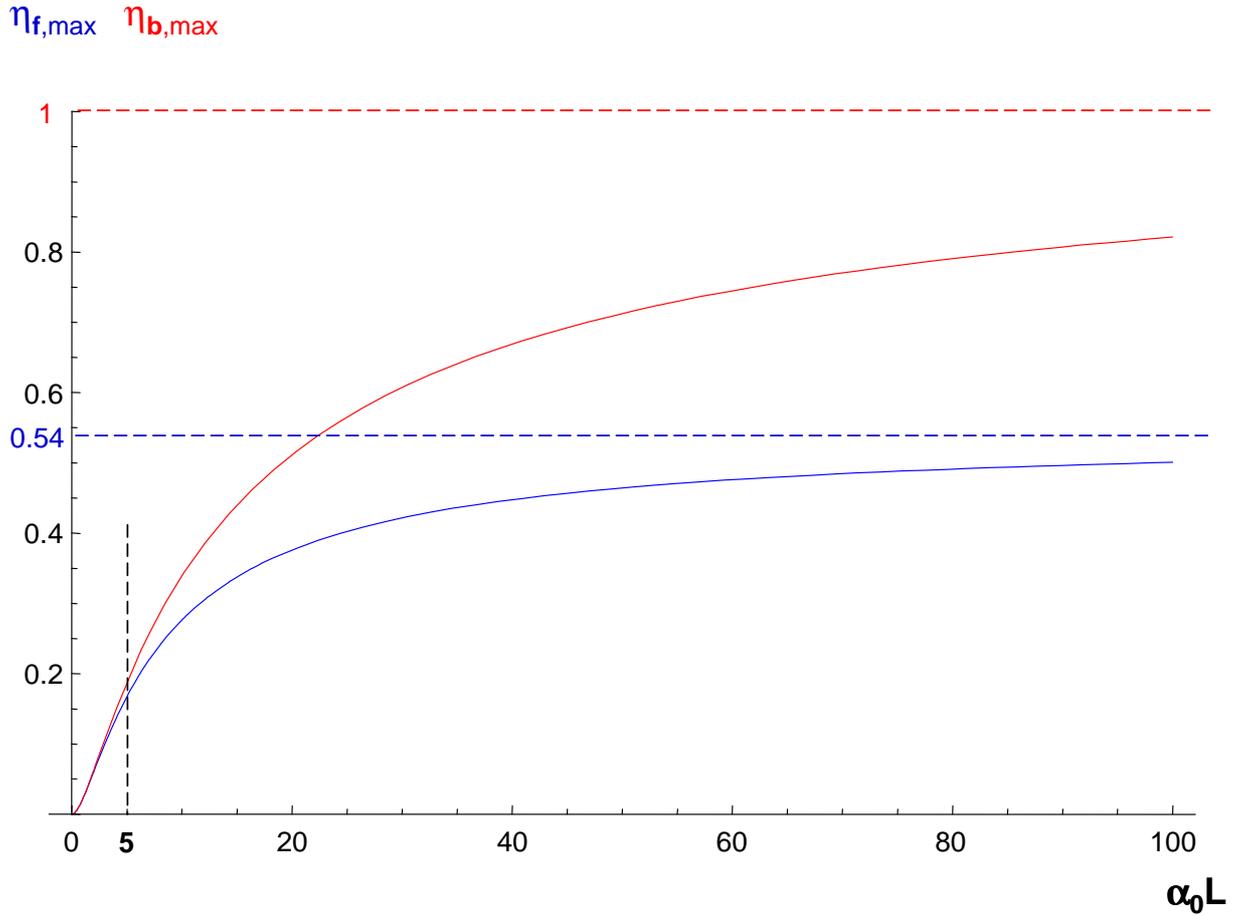


FIG. 3.4 – Efficacité de restitution en intensité du premier écho AFC, pour un facteur de forme $\theta = \gamma t_{12}$ optimal. A très forte opacité $b_0 = \alpha_0 L$, l'efficacité maximale tend vers 54% en propagation vers l'avant ($\eta_{f,max}$), et vers l'unité en propagation vers l'arrière ($\eta_{b,max}$). Cela permet de restituer fidèlement l'amplitude de l'impulsion de signal. Cependant, pour des opacités accessibles expérimentalement (ici pour $b_0 = 5$), les efficacités optimales sont de l'ordre de celles calculées pour le premier peigne, en 3.4.2.2.

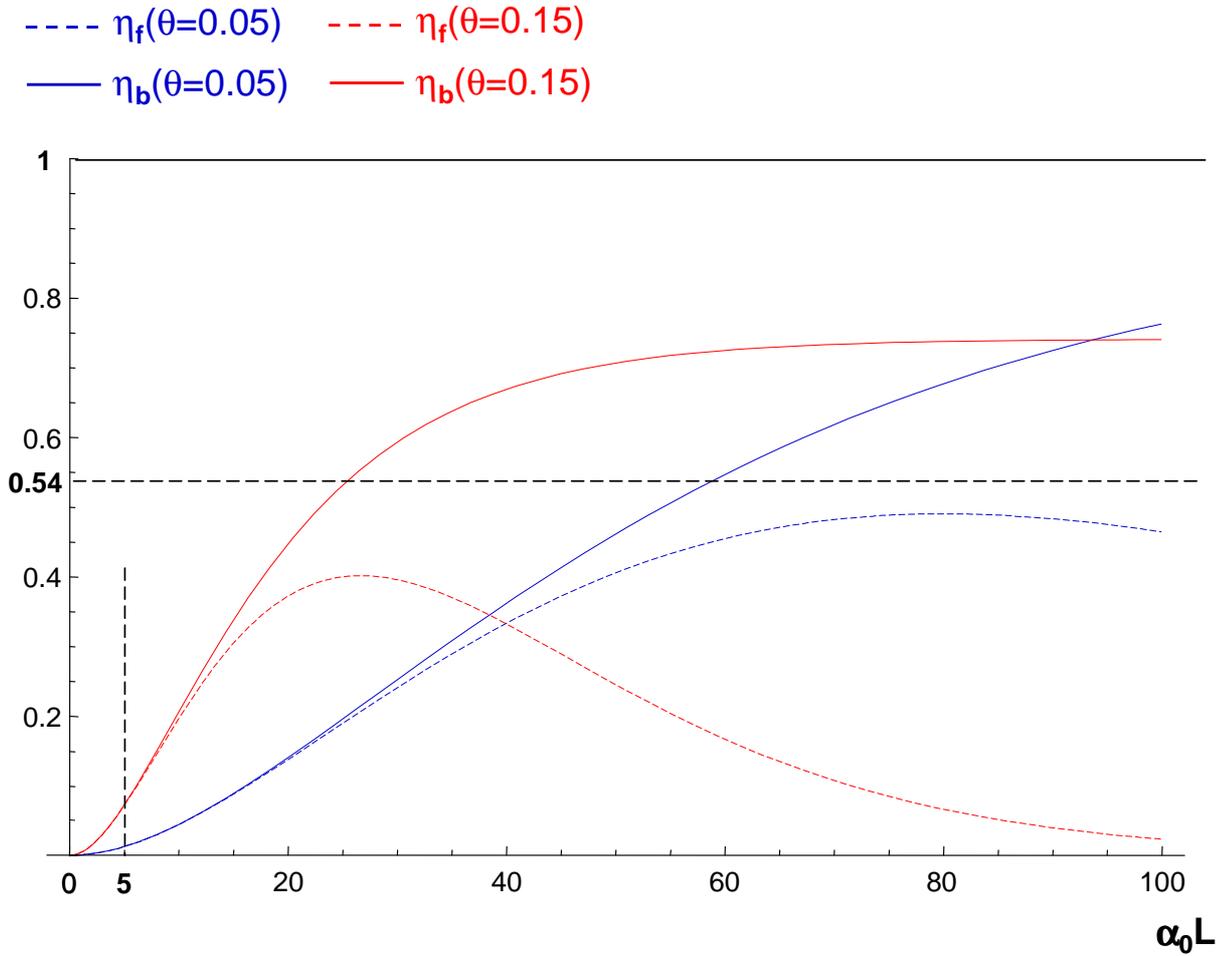


FIG. 3.5 – Efficacité de restitution en intensité du premier écho AFC, pour deux facteurs de forme $\theta = \gamma t_{12}$ quelconques ($\theta = 0.05$ et $\theta = 0.15$). On constate que la réabsorption de l'écho AFC fait chuter l'efficacité de restitution vers l'avant $\eta_f(b_0, \theta)$, pour les deux valeurs de θ représentées, quand l'opacité b_0 augmente. Cela ne se produit pas pour les échos AFC contre-propageants, dont l'efficacité de restitution $\eta_b(b_0, \theta)$ tend vers $e^{-2\theta}$ à très forte opacité ($b_0 > 100$).

Chapitre 4

Expériences d'écho AFC

Sommaire

4.1	Introduction	75
4.2	Montage expérimental	77
4.2.1	Réalisation du champ magnétique	77
4.2.2	Montage optique	79
4.2.3	Séquence de temps	80
4.3	Résultats expérimentaux	82
4.3.1	Orientation du cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ dans le champ magnétique	83
4.3.2	Observation du peigne et de l'écho AFC	83
4.3.3	Optimisation de l'amplitude du champ magnétique	85
4.4	Analyse et discussion	86
4.4.1	Analyse des résultats	86
4.4.2	Modélisation de l'efficacité du peigne AFC	88
4.5	Conclusion - Discussion	91

4.1 Introduction

La réalisation du protocole demande au préalable de disposer d'un peigne spectral pour l'absorption. Une telle structure n'est pas naturelle pour les cristaux dopés qui présentent juste une raie d'absorption inhomogène large. La structure d'absorption périodique doit donc être créée artificiellement par pompage optique sélectif en fréquence ou *hole-burning* spectral. Cette structuration artificielle du profil inhomogène se retrouve dans plus plusieurs protocoles (voir par exemple 3.3.1). Pour qu'un tel découpage des populations atomiques soit possible, il faut qu'existe au moins un niveau avec une durée de vie longue (*shelving-state* où viennent s'accumuler les populations).

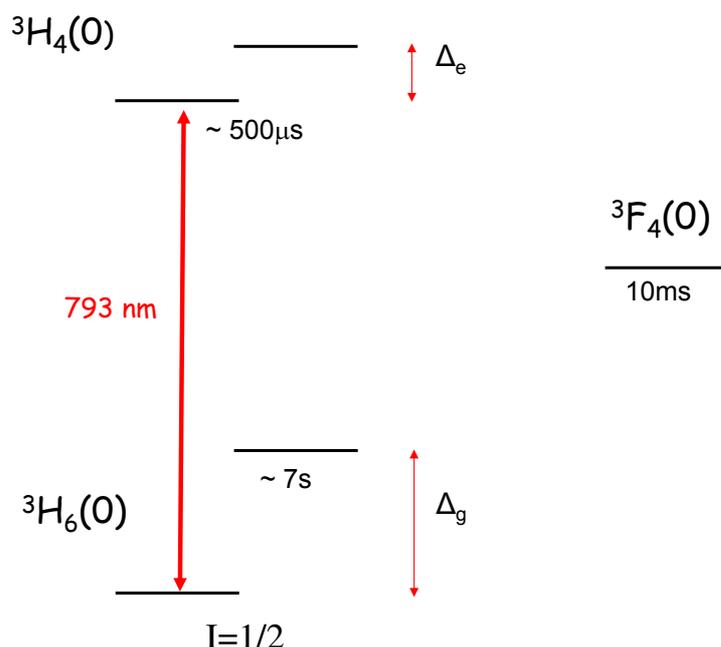


FIG. 4.1 – Schéma de niveaux du thulium en champ magnétique. Les durées de vie indiquées sont celles des populations à 2,3 K.

On pourrait imaginer utiliser le niveau métastable 3F_4 dont la durée de vie est longue ($\approx 10 \text{ ms}$) par rapport à celle du niveau excité 3H_4 ($\approx 500 \mu\text{s}$ cf. Fig. 4.1). Il est en effet possible de voir un trou spectral par accumulation dans le niveau métastable sans champ magnétique. On constate cependant qu'il est difficile de creuser profondément un trou lorsque l'opacité initiale est grande. Dans ce régime que nous recherchons particulièrement, on se trouve limité par la durée de vie du niveau métastable qui n'est pas suffisamment longue. On choisit donc d'appliquer un champ magnétique. Les niveaux fondamentaux et excités se séparent en deux doublets Zeeman dont la durée de vie peut atteindre plusieurs secondes. On observe alors des trous spectraux profonds et de longue durée de vie [51]. L'accumulation des populations pour préparer le peigne se fera donc dans les sous-niveaux Zeeman.

Nous venons d'isoler la structure de niveaux qui doit nous permettre de préparer le peigne d'absorption. Nous devons maintenant appliquer une séquence de préparation qui produise le peigne par pompage optique. De façon intuitive, on peut voir le *hole-burning* spectral comme l'enregistrement dans le profil d'absorption du spectre du laser incident. Pour créer un peigne dans l'absorption, on utilisera un spectre de pompage optique qui a une structure semblable. On considérera d'abord une séquence simple comme cela a été proposé par Riedmatten *et al.* [39]. On pourra plus tard se poser la question du rapport existant entre le spectre du pompage optique et la structure atomique finale comme cela

été fait dans le groupe par la suite [52].

Même si l'écho AFC avait été observé dans $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$ [39], reproduire l'expérience dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ présente un fort intérêt. Les propriétés du thulium sont en effet plus sympathiques que celles du néodyme. La durée de vie des cohérences est nettement plus longue, autrement dit l'élargissement homogène est faible. C'est un point clé pour l'AFC car cet élargissement donne la résolution ultime de la préparation par *hole-burning* spectral. On s'attend donc à produire un peigne plus nettement contrasté dont les pics sont fins. L'efficacité doit augmenter. Une autre limitation de $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$ qui a un effet comparable est l'apparition de la structure superhyperfine en champ magnétique. L'effet d'interaction entre le néodyme et les ions voisins dans la matrice cristalline apparaît d'abord comme un élargissement effectif de la raie homogène, avant d'observer un éclatement de structure. Un dernier point fort, cette fois lié à notre montage, est l'utilisation d'un laser stabilisé sur une cavité. Un laser non stabilisé avec une largeur de 1 MHz typiquement limitera directement la résolution spectrale. Disposant d'un laser étroit (sub-kHz) et d'un échantillon à faible élargissement homogène, nous espérons un meilleur contrôle sur la finesse et le contraste du peigne. L'efficacité attendue doit être nettement meilleure.

L'expérience vise à observer l'écho AFC vers l'avant et à en mesurer systématiquement l'efficacité.

4.2 Montage expérimental

Les expériences d'écho de photon à deux impulsions nous ont permis d'avoir une bonne maîtrise des processus d'excitation. Le montage optique et la séquence temporelle pourront être modifiés à peu de frais pour l'AFC comme nous le verrons dans les parties 4.2.2 et 4.2.3. Comme cela a été discuté précédemment en 4.1, il est préférable d'utiliser des sous-niveaux Zeeman dont la durée de vie peut être très longue [51]. Il nous faut donc appliquer un champ magnétique à l'échantillon. La réalisation technique du champ sur la queue du cryostat, pouvant atteindre plusieurs centaines de Gauss, est détaillée dans une première partie.

4.2.1 Réalisation du champ magnétique

La production de champs magnétiques intenses est un domaine largement balisé. L'adaptation à nos contraintes demande cependant une étude technique digne d'intérêt. Nous souhaitons en effet avoir un champ relativement fort. Dans la mesure où nous utilisons un cryostat pour refroidir l'échantillon, l'emploi de bobines supraconductrices est directement envisageable. C'est la seule solution viable si on souhaite atteindre un Tesla

par exemple. L'idée est séduisante, mais demande une modification importante de l'expérience. On peut acheter un nouveau cryostat qui contient des bobines supraconductrices. On pourrait aussi modifier un cryostat existant pour ajouter un insert magnétique¹. La première option demande un lourd investissement. La seconde n'est pas envisageable avec le cryostat utilisé jusqu'à présent, car son canal central est trop étroit (1 cm environ). Les délais de livraison pour un insert sur mesure sont aussi particulièrement longs.

On fait donc le choix de construire des bobines extérieures au cryostat. Cette solution revêt plusieurs avantages. Elle évite les incidents dus au *quenching* des bobines supra [53]. En conséquence, on peut faire varier le champ rapidement (allumer et éteindre par exemple). La réalisation expérimentale n'a nécessité que du matériel déjà présent au laboratoire. Elle a largement été guidée par des discussions avec Daniel Comparat et Andrea Fioretti qui ont réalisé plusieurs jeux de bobines pour le piégeage magnéto-optique de vapeurs atomiques. Le refroidissement du conducteur est un point clé pour l'obtention d'un champ fort. Nous avons décidé d'utiliser un tube de cuivre creux. Le tube est parcouru par un courant fort et refroidi par de l'eau circulant à l'intérieur.

Nous décidons d'utiliser du tube de cuivre recuit de diamètre 3 mm (épaisseur 0,5 mm) que l'on pourra cintrer facilement pour effectuer le bobinage. Le diamètre intérieur de la bobine doit être de 12,5 cm pour entourer la tête du cryostat. Compte tenu de l'encombrement, il est possible de faire environ 50 tours pour chaque bobine, dont le rayon moyen typique est 8 cm. Il faudra donc 25 m de tube par bobine (soit 50m pour les deux) que l'on enroule dans la gorge du support en acétal (voir fig. 4.2). Pour empêcher le contact électrique entre les spires, les deux tubes sont préalablement isolés sur toute leur longueur par des gaines thermorétractables (6mm de diamètre avant rétreint et 2mm après).

On peut finalement estimer les caractéristiques électriques et magnétiques. La résistivité du cuivre est de $\rho = 17.10^{-9}\Omega.m$. La résistance des deux bobines en série sera $\rho \times (50m)/(2\pi \times 1mm \times 0,5mm) = 0.27\Omega$. On pourra ainsi utiliser une alimentation fort-courant disponible au laboratoire (160A pour 32V²) au maximum de ses possibilités. Pour 100A, on peut espérer un champ magnétique de 700 Gauss environ au centre de chaque bobine, soit environ le même ordre de grandeur pour une paire en configuration Helmholtz. Les performances de la bobine seront vérifiées expérimentalement afin de calibrer le champ magnétique.

Le refroidissement est un point critique lorsqu'il s'agit de dissiper 3kW environ. On fait donc passer de l'eau dans le tube grâce à un ancien circulateur de laser à colorant. Il permet d'avoir une pression suffisante en amont (12 bars) pour que le fluide puisse circuler. Avec un débit de 1L/min et en dissipant 3kW par exemple, l'eau verra sa température

¹Cette option est proposée par Cryogenics Limited : <http://www.cryogenic.co.uk/>

²Hewlett Packard 6683A

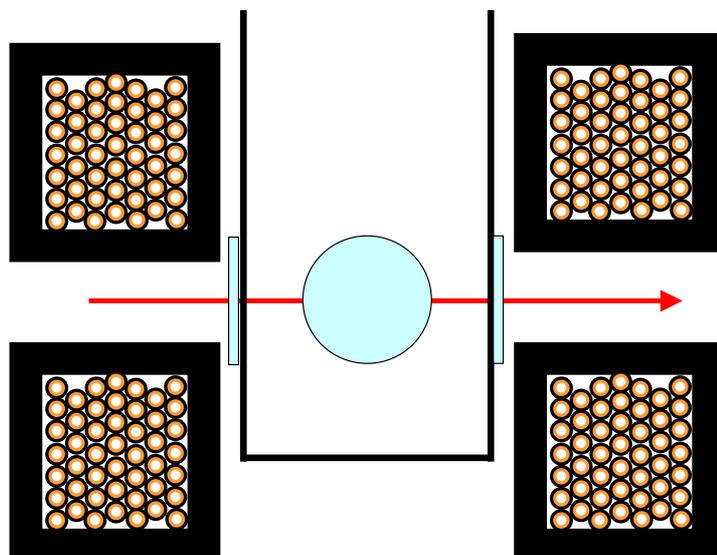


FIG. 4.2 – Paire de bobines entourant la queue du cryostat. L'axe de révolution des bobines est confondu avec celui du cryostat.

élevée de 43°C . Toutes ces valeurs sont acceptables et devraient permettre de produire le champ magnétique voulu.

Après assemblage, on peut maintenant vérifier la valeur du champ magnétique. Pour cela, on utilise une simple sonde à effet Hall ³ dont la gamme correspond à nos attentes. Cette sonde est elle-même calibrée par un aimant de référence ⁴. L'incertitude restante est due à la réponse non linéaire de la sonde qui est de 1% typiquement sur l'ensemble de la gamme. Cette calibration nous donne une réponse de 7,02 Gauss/A qui correspond bien aux valeurs attendues. En pratique, on dépassera rarement 600 Gauss comme on le verra par la suite.

La réalisation du champ magnétique avec du matériel existant fut rapide. Elle constitue néanmoins une évolution importante du montage plus significative que dans sa partie optique.

4.2.2 Montage optique

Le montage optique est très légèrement modifié par rapport aux expériences d'écho de photon (Fig. 2.3). On cherche d'une part à avoir un faisceau fort qui servira à la préparation du peigne. Un plus faible servira de sonde. Les deux devant être contrôlés indépendamment lors de la séquence temporelle. On souhaite aussi que le faisceau de

³Honeywell SS94A1 disponible chez Radiospares

⁴J.W. Bell inc. VA-070A reference magnet 295G

préparation soit plus large spatialement que la sonde. Les conditions expérimentales et le montage sont donc les mêmes que pour les expériences décrites en 2.3.

Seule originalité, on imposera un petit angle entre les faisceaux sur le cristal (quelques mrad). Il n'est en effet pas nécessaire qu'ils soient dans le même mode spatial puisque le plus intense sert de préparation (pompage optique) des populations. Cela évitera d'éblouir le détecteur qui enregistre la sonde ou plus tard d'endommager un module de comptage de photon lorsque la sonde sera réduite au niveau du photon unique.

4.2.3 Séquence de temps

La réalisation du protocole est largement imposée par la dynamique atomique et plus précisément par la préparation du peigne. Connaissant d'ores et déjà les temps caractéristiques, on peut mettre en place une séquence de temps appropriée. Avant de rentrer dans le détail de la production d'un peigne en absorption, on peut se laisser guider par quelques ordres de grandeur. Après avoir procédé à la préparation et avant de venir sonder le peigne, par un *chirp* (pour enregistrer le profil du peigne) et/ou par une impulsion « à stocker », un temps d'attente s'impose. En effet, la préparation va faire intervenir des impulsions d'aire forte pour modifier les populations par pompage optique. Afin d'éviter les photons indésirables d'émission spontanée, on attendra 50ms qui est un temps bien plus long que la durée de vie du niveau excité ($\approx 800\mu\text{s}$). On évite ainsi une limite fondamentale de l'écho de photon comme mémoire quantique, comme cela a été discuté en 1.5. La séquence de sonde (*chirp* & impulsion sonde) durera ensuite moins d'une milliseconde avant que l'on ne recommence.

4.2.3.1 Séquence de préparation

Avant d'appliquer cette séquence de pompage impulsif, il est important de vérifier l'effet du champ magnétique sur la dynamique des populations. On commence donc par un simple champ continu monochromatique pour une durée longue (plusieurs ms). On vient sonder l'effet de la pompe après 50 ms. Sans champ magnétique on n'observe pas d'effet significatif de la pompe car le délai d'attente est plus long que la durée de vie du niveau métastable $^3\text{F}_4$ (cf. Fig. 4.1). Les populations reviennent donc dans le fondamental. L'application d'un champ magnétique de quelques dizaines de Gauss suffit à faire apparaître un trou dans l'absorption, car la durée de vie des populations dans les niveaux Zeeman peut atteindre plusieurs secondes à basse température [51, 54]. À 2,3 K, température à laquelle l'expérience sera conduite, la durée de vie est de 7s environ. On remarque une forte dépendance de cette durée à la température autour de 2-3K. Il est donc important de bien pouvoir stabiliser la température dans cette zone.

Ayant maintenant vérifié la levée de dégénérescence des sous-niveaux Zeeman que nous utiliserons pour stocker les populations et modifier le profil d'absorption par pompage optique, nous pouvons nous poser la question de la création du peigne de fréquence atomique. Notre objectif premier est d'observer un écho par AFC et de vérifier l'intérêt du $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ par rapport à d'autres matériaux en termes d'efficacité dans un premier temps. On cherche donc à appliquer une séquence de préparation élémentaire comme l'on fait Riedmatten *et al.* [39]. Elle est constituée de paires d'impulsions que l'on répète pour obtenir un pompage optique efficace. Une telle séquence est simple et intuitive. On peut en effet montrer qu'en régime d'aire faible, une série d'impulsions appliquée en un temps plus court que la durée de vie des cohérences optiques produit une « petite » modification du spectre des populations proportionnelle à la densité spectrale de puissance [15]. De façon intuitive, on imprime le spectre optique de la séquence de préparation par accumulation. On comprend mieux ainsi pourquoi choisir des paires d'impulsions. Par transformation de Fourier, le spectre d'une paire fait apparaître une modulation sinusoïdale dans la bande passante de chaque impulsion (cf. [55]). C'est la séquence la plus élémentaire qui produira une modulation périodique du profil d'absorption. Cette modulation, même faible, est à l'origine de l'écho AFC.

Pour l'expérience, on choisira donc les valeurs suivantes : Une paire est constituée de deux impulsions de 300ns (FWHM) séparée de $T = t_{12} = 1,5\mu\text{s}$. La durée d'une impulsion est choisie aussi courte que possible, dans notre cas limitée par la bande passante du modulateur acousto-optique (AOM). La séparation entre les pulses est fonction du pouvoir de résolution du matériau, et dépend de ses caractéristiques propres. La valeur de $1,5\mu\text{s}$ a été ajustée pour obtenir un peigne bien contrasté. L'écart entre les dents du peigne sera simplement $1/T = 660\text{ kHz}$. On attend enfin $t_r = 100\mu\text{s}$ avant de répéter notre motif. Ce temps doit être plus long que le temps de cohérence ($30\mu\text{s}$ dans les conditions expérimentales). Pour accumuler les populations, on répète 5000 fois cette séquence (voir Fig. 4.3).

Par une séquence de sonde, on va d'une part vérifier que le peigne est présent sur le profil d'absorption (*chirp* en fréquence) et d'autre part tâcher d'observer un écho AFC (impulsion sonde).

4.2.3.2 Séquence de sonde

Avant d'observer un écho, on va scanner le profil d'absorption pour vérifier l'effet de la séquence de préparation. On utilise pour cela l'AOM présent sur le faisceau sonde dont on balaye rapidement la fréquence RF. Il n'est pas possible de faire des *chirps* trop rapides sous peine de dégrader la résolution du scan qui est typiquement limitée par la racine du taux de *chirp*. On choisit donc de faire un *chirp* « grossier » de 10 MHz en $100\mu\text{s}$ (taux de

chirp ($(320\text{kHz})^2$). On observe alors l'intégralité du peigne avec une résolution dégradée. Suivra un *chirp* « fin » de 2 MHz en $150 \mu\text{s}$ (taux de *chirp* $(120\text{kHz})^2$).

On applique enfin une impulsion courte qui doit générer l'écho. Sa bande passante doit être plus petite que la largeur du peigne. Cela impose que l'impulsion de sonde soit plus longue que les pulses de la séquence de préparation. Nous choisissons une durée de 450 ns (FWHM).

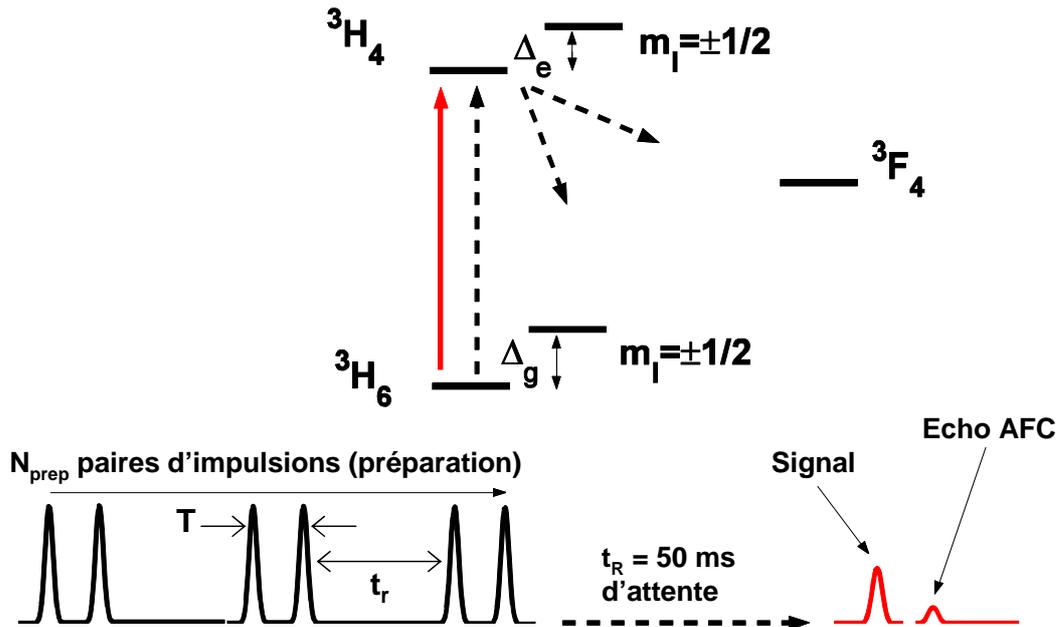


FIG. 4.3 – Séquence de temporelle qui combine préparation du peigne par $N_{\text{prep}} = 5000$ paires d'impulsions, et sonde (*chirp* & impulsion sonde). On ménage un intervalle de $t_R = 50 \text{ ms}$ entre les deux pour éliminer l'émission spontanée depuis le niveau excité. Au préalable et pour vérifier l'effet du champ magnétique sur la dynamique des populations, on remplace la séquence de préparation par une longue impulsion « continue » de plusieurs ms. On observe alors bien l'effet de *hole-burning* dans les sous-niveaux Zeeman.

Cette séquence doit nous permettre d'observer l'écho AFC et de comprendre un peu mieux la relation entre la forme du peigne et l'efficacité de diffraction temporelle.

4.3 Résultats expérimentaux

Avant de s'intéresser à l'impact de la séquence de préparation lors du pompage optique, il est crucial de bien définir l'orientation du champ magnétique par rapport aux axes cristallographiques.

4.3.1 Orientation du cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ dans le champ magnétique

Les propriétés du pompage optique dépendent fortement de l'orientation du champ magnétique. L'étude exhaustive a été menée par Anne Louchet lors de sa thèse [54]. Le rapport de branchement qui a permis de démontrer l'excitation optique d'une cohérence de spin y est extrêmement sensible [56], il impose largement le pompage vers les niveaux Zeeman. Lors du pompage optique, il faut aussi se rappeler qu'une partie des populations transite par l'état métastable ${}^3\text{F}_4$. Ce chemin de désexcitation [57] fait intervenir une cascade non radiative qui peut basculer le spin nucléaire. Il est difficile d'isoler ce mécanisme de la désexcitation directe depuis le niveau excité ${}^3\text{H}_4$.

Par ailleurs, même si l'effet du champ sur la durée de vie des populations n'a pas été évalué directement, on peut soupçonner une dépendance aussi. Un dernier élément de complexité dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ est la présence de 6 sites de substitution cristallographique qui doivent être soit isolés (polarisation du laser perpendiculaire au dipôle de transition) soit rendus équivalents (configuration magnétique équivalente) (voir Fig. 2.2). Cette contrainte impose la direction de propagation du laser le long de $[110]$, ce qui simplifie largement l'analyse [54].

Nous avons finalement choisi d'imposer le champ magnétique et la polarisation le long de $[001]$. Cette configuration permet d'assurer que tous les sites excités sont magnétiquement équivalents. On est loin de la configuration qui optimise le rapport de branchement [56], mais elle permet néanmoins d'observer un pompage optique efficace entre les niveaux Zeeman. Le splitting Zeeman reste relativement fort, *i.e.* 28 kHz/G pour l'état fondamental ⁵ et 6 kHz/G pour l'état excité.

On impose une amplitude du champ magnétique de 210 G. Cette valeur sera justifiée *a posteriori* en 4.3.3, car elle permet d'optimiser l'efficacité de l'écho AFC.

4.3.2 Observation du peigne et de l'écho AFC

Une fois tous les paramètres expérimentaux ajustés, on peut appliquer la séquence de préparation décrite précédemment en 4.2.3.1. Les *chirps* nous permettent d'observer le peigne de fréquence atomique qui plus modestement représente une modulation spectrale de l'absorption (Fig. 4.4, colonnes A et B).

La séquence de préparation est toujours la même, elle est constituée de paires d'impulsions (voir 4.2.3.1), on en fait varier la puissance globale en atténuant plus ou moins le faisceau de pompe. Nous n'avons pas mesuré indépendamment la puissance de ce faisceau qui reste très faible (de l'ordre du μW au maximum) et varie sur trois ordres de grandeur.

⁵Cette valeur est à comparer au maximum du tenseur gyromagnétique avec 40 kHz/G [54].

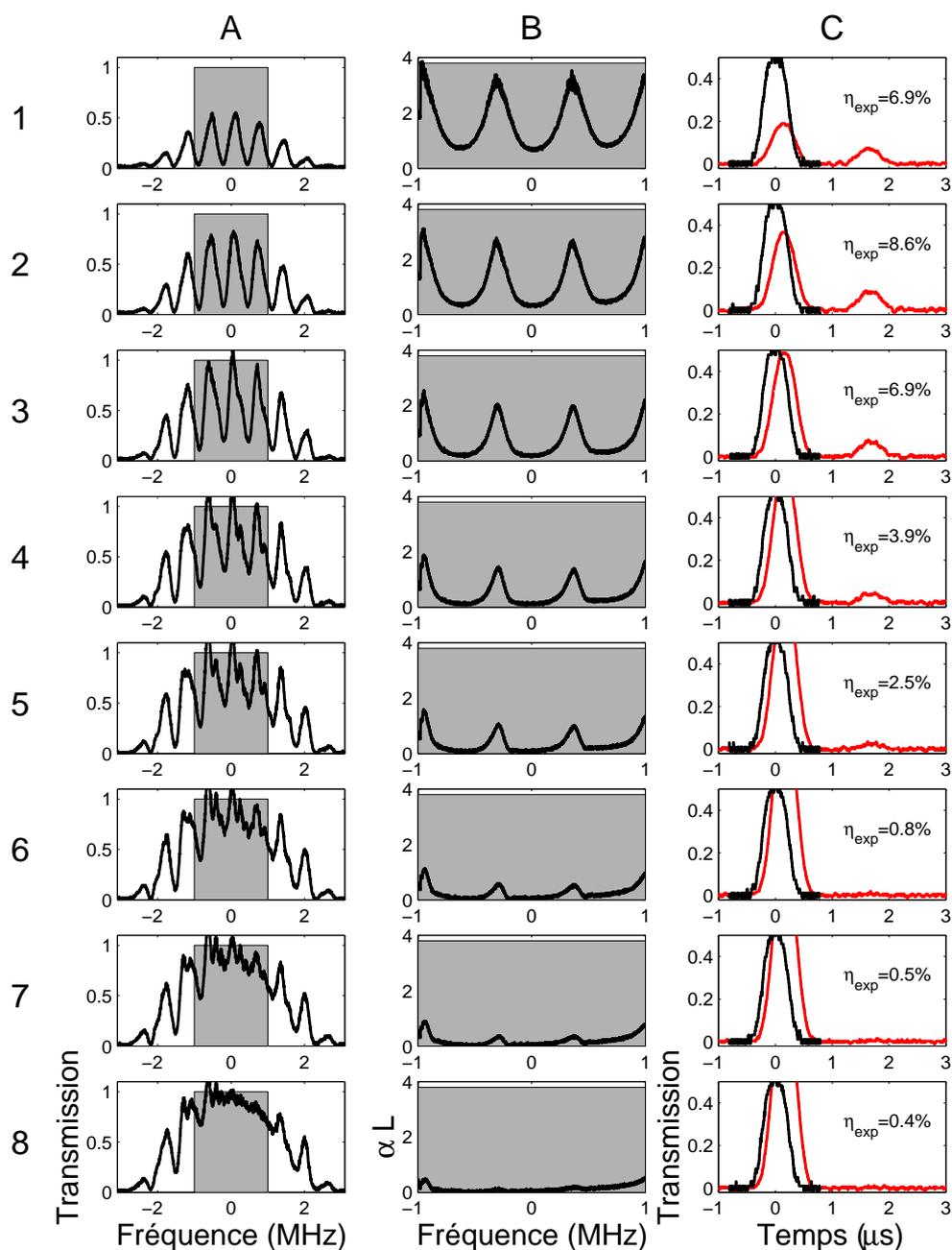


FIG. 4.4 – Spectres du profil d'absorption obtenus à partir d'un *chirp* « grossier » (colonne A, on a représenté la transmission) puis un *chirp* « fin » (colonne B, on a cette fois représenté l'opacité notée αL) pour différentes puissances de la séquence de préparation (lignes 1 à 8 où la puissance va croissante). Lorsque le peigne est bien visible, on observe un écho AFC : colonne C avec en noir l'impulsion incidente (réduite de 50%) et en rouge l'impulsion transmise directement suivie de l'écho.

On comprend globalement la forme du peigne pour une puissance croissante (Fig. 4.4, colonnes A). Lorsque la puissance est faible (ligne 1), la structure périodique du peigne est visible, mais peu accentuée et l'absorption reste élevée proche de sa valeur initiale. À l'inverse, à forte puissance (ligne 8), le peigne est difficilement visible, car le pompage optique élargit par saturation chaque pic et efface la structure. Entre les deux, il est possible d'observer un peigne nettement contrasté correspondant à un compromis entre une puissance suffisante pour assurer le creusement sans être trop forte pour éviter l'élargissement. Le contraste du peigne est plus net avec un *chirp* « fin » (Fig. 4.4, colonne B) qui évite la déformation du spectre comme on peut le voir en A-5 (Fig. 4.4). Lorsque le peigne est bien contrasté, on observe alors clairement un écho AFC (Fig. 4.4, colonnes C). L'écho apparaît avec un décalage temporel de $T = 1,5 \mu\text{s}$ ce qui correspond bien à l'inverse de la période du peigne. C'est aussi la séparation des impulsions de la séquence de préparation. L'efficacité approche 9% pour une puissance intermédiaire. Pour l'estimer, on compare l'intensité de l'écho avec celle de l'impulsion incidente (en noir sur la Fig. 4.4 colonne C, représentée réduite de 50%). Pour calibrer la détection et enregistrer l'impulsion incidente, on « blanchit » l'échantillon en appliquant une impulsion longue et puissante (plusieurs mW). Ceci a pour effet de creuser un trou très large (une dizaine de MHz) et parfaitement transparent pour l'impulsion incidente qui sert de référence pour estimer l'efficacité η_{exp} de l'écho. On doit maintenant comprendre le rapport entre la structure du profil d'absorption et l'efficacité de génération de l'écho. Cela doit nous permettre de conclure sur les limites de notre séquence de préparation. Avant d'entrer dans cette analyse, il nous faut conclure sur l'amplitude du champ magnétique, qui s'avère particulièrement sensible pour l'expérience d'écho AFC.

4.3.3 Optimisation de l'amplitude du champ magnétique

La question de l'orientation du champ magnétique a déjà été abordée en 4.3.1. Elle dépend fortement des caractéristiques cristallographiques. L'amplitude ne devrait pas être un problème si on disposait d'un champ magnétique suffisamment fort pour que les sous-niveaux Zeeman associés à l'état fondamental et l'état excité puissent être rejetés hors de la bande de préparation du peigne (quelques MHz ici). Cela reste difficile pour l'état excité à cause de la faible valeur du splitting (6 kHz/G). En conséquence, des effets de pompage croisés entre les sous-niveaux Zeeman peuvent apparaître et « endommager » le peigne. Il est cependant possible d'éviter ces effets délétères dans notre situation.

La réponse est ici donnée par la spectroscopie de *hole-burning* dans les milieux à élargissement inhomogène [58]. Une pompe monochromatique creuse un trou à la fréquence centrale par pompage optique. Lorsque les états fondamental et excité se séparent en deux sous-niveaux, on observe aussi une paire de trous latéraux à $\pm\Delta_e$, quatre anti-trous

à $\pm\Delta_g$ et $\pm(\Delta_g - \Delta_e)$ [54]. Dans notre cas, on peut imposer Δ_g suffisamment grand pour rejeter les anti-trous hors de la bande passante. Il est plus difficile de rejeter les trous latéraux. Lorsque l'on tente de creuser un peigne, la situation est plus complexe, mais on peut transposer nos connaissances sur le *hole-burning* monochromatique. On voit dans ce cas-là apparaître deux peignes latéraux centrés sur $\pm\Delta_e$. Ces structures vont se recouvrir avec le peigne principal. C'est une autre façon d'interpréter les effets de pompage croisés entre les sous-niveaux Zeeman. Pour éviter que les structures latérales ne détruisent le peigne principal, on les fait coïncider en imposant Δ_e comme multiple de la période du peigne $1/T = 660$ kHz. On choisit donc $\Delta_e = 1.3$ MHz $\approx 2/T$ avec un champ magnétique modéré de 210 G. Cela permet effectivement de rejeter les effets dus aux sous-niveaux du fondamental, car $\Delta_g = 6$ MHz est plus grand que la bande passante du peigne.

Une étude systématique en champ magnétique a été menée par M. Bonarota lors de sa thèse [52]. Elle valide bien le choix intuitif que nous avons fait initialement.

4.4 Analyse et discussion

L'observation d'un écho (Fig. 4.4) est un résultat important. L'efficacité de 9% est bonne par rapport aux techniques d'écho de photon, qui restent au niveau du %. C'est aussi un ordre de grandeur plus important que ce qui avait été observé par Riedmatten *et al.* pour l'AFC [39]. Même si ce résultat est encourageant, il nous faut en comprendre les limitations.

Nous souhaitons ici répondre successivement à deux questions. Nous avons systématiquement enregistré le spectre du profil d'absorption (Fig. 4.4, colonne B). On peut d'ores et déjà se demander si le profil d'absorption enregistré permet de prédire l'efficacité de l'écho au-delà du simple constat : l'efficacité est bonne lorsque le peigne est bien contrasté. Nous aborderons ce point dans une première partie (4.4.1). L'efficacité de l'AFC dépend fortement de l'opacité du milieu et de la forme du peigne. La finesse des dents, définie par une analogie avec un interféromètre de Fabry-Perot, est en effet un paramètre clé [59]. En modélisant la forme du peigne (partie 4.4.2), nous pourrions conclure sur les limites du présent cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ et sur la technique de préparation choisie.

4.4.1 Analyse des résultats

Il est possible de prédire l'efficacité à partir du profil d'absorption enregistré, comme cela a été abordé en 3.4.2. On peut généraliser le traitement précédent en supposant uniquement que la susceptibilité $\chi(\omega)$ est périodique, et qu'on la développe en série de Fourier (Eq. 3.21). On peut alors trouver une formule générale pour l'efficacité indépendante de la forme exacte du peigne :

$$\eta = \frac{1}{4} \frac{|c_1|^2}{\text{Im}[c_0]^2} \langle b \rangle^2 e^{(-\langle b \rangle)} \quad (4.1)$$

On définit $\langle b \rangle$ comme l'opacité moyenne : $\langle b \rangle = -k \text{Im}[c_0] L$.

Dans un premier temps, on va comparer cette formule aux résultats expérimentaux. En calculant la transformée de Fourier du spectre d'absorption (Fig. 4.4, colonne B), on peut remonter aux différents coefficients de l'équation 4.1. On peut donc comparer les valeurs de l'efficacité mesurée et celles prédites par l'analyse du spectre (Fig. 4.5).

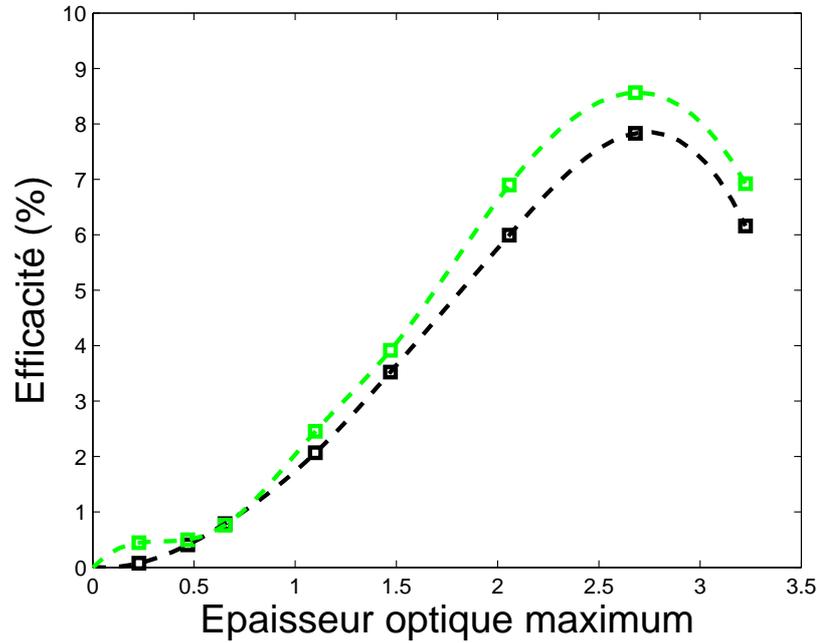


FIG. 4.5 – Efficacité de l'AFC en fonction de l'opacité maximale (sommet des pics d'absorption) pour les différentes courbes de la figure 4.4. On compare les valeurs expérimentales η_{exp} en vert (Fig. 4.4, colonne C) à la valeur prédite (en noir) à partir du spectre d'absorption (eq. 4.1). Les lignes pointillées servent uniquement à relier les points. La puissance de pompage augmente de la droite vers la gauche puisque l'opacité chute à cause du creusement.

On a choisi de représenter les points de la figure 4.5 en fonction du maximum de l'opacité (sommet des pics d'absorption). On aurait pu utiliser la puissance du faisceau de préparation qui est le paramètre expérimental qui varie entre les différents points. Cependant, la puissance reste faible (de l'ordre du μW au maximum) et varie sur trois ordres de grandeur, ce qui est difficilement mesurable dans la configuration actuelle. On aurait pu aussi lui préférer l'opacité moyenne $\langle b \rangle$. Le maximum de l'opacité est sans doute plus pertinent, car il représente l'absorption « disponible » pour l'AFC. C'est un

paramètre clé, comme l'a souligné la proposition théorique [59] que l'on retrouvera par la suite.

On constate sur la figure 4.5 que la prédiction est systématiquement plus faible que la valeur expérimentale de l'efficacité. Cela traduit sans doute la difficulté de mesurer précisément les fortes absorptions qui influent largement sur l'efficacité. Même si la mesure du spectre d'absorption se fait en *chirpant* « finement » le laser (Fig. 4.4, colonne B), il n'est pas exclu que le taux de *chirp* ($(120\text{kHz})^2$) soit encore un peu trop rapide. Dans ce cas, les pics d'absorption peuvent être partiellement écrêtés (par convolution), ce qui conduit à sous-estimer l'opacité et par suite l'efficacité. Il est de façon générale difficile de mesurer une forte absorption. Un léger *offset* du signal de transmission peut être malencontreusement interprété comme le maximum de l'opacité. Par exemple, nous utilisons un *tapered-amplifier* qui émet un fond de fluorescence très large bande (plusieurs nm) et vient se superposer au laser ⁶. Cette lumière hors résonance n'est pas absorbée et vient fausser la mesure de transmission.

On peut donc se satisfaire globalement de l'accord entre la prédiction et la mesure de l'efficacité. Cet accord quantitatif nous permet de valider *a posteriori* une hypothèse forte du calcul, à savoir l'homogénéité spatiale (le long de z) de la préparation spectrale. On a en effet supposé que la susceptibilité est indépendante de z . Cette hypothèse simplifie largement les calculs [59], mais n'est pas évidente *a priori*. En effet dans la mesure où la préparation spectrale se fait d'une série d'impulsions qui se propagent dans un milieu optiquement épais, la propagation de ces pulses peut être complexe [15]. Dans le cas le plus simple, où l'aire des impulsions est faible, l'amplitude sera atténuée exponentiellement comme nous l'avons vu lors que l'étude de la propagation (voir eq. 1.17 par exemple). En tout état de cause, l'intensité variera suivant z . On attend donc un peigne inhomogène suivant la profondeur dans le milieu. Une telle étude se place dans la continuité du présent travail, et des simulations numériques de la propagation du peigne ont été réalisées, dont les résultats actuels demandent une analyse plus poussée.

4.4.2 Modélisation de l'efficacité du peigne AFC

L'étude précédente nous a permis de relier le profil d'absorption à l'efficacité de l'écho sans préjuger de la forme des dents. On peut aller plus loin en modélisant cette fois le profil exact du peigne comme nous l'avons fait en 3.4.2 sur deux exemples : filtre sinusoidal et peigne périodique à dents Lorentziennes. On peut alors évaluer directement hauteur des dents d'absorption (opacité maximum) et largeur des pics, puis les comparer à un optimum qui maximise l'efficacité η_{max} (Eq. 3.25).

Supposer que les dents du peigne ont une allure lorentzienne n'est pas évident *a*

⁶Cet effet est d'autant plus important que notre amplificateur était vieillissant.

priori. Le processus de pompage optique imposé par la séquence de préparation peut être complexe et demande une étude spécifique (cf. [55]). La forme lorentzienne donne en réalité un résultat satisfaisant (voir Fig. 4.6) et permet des calculs analytiques pour l'efficacité (cf. partie 3.4.2).

On choisit donc d'ajuster les profils d'absorption de la figure 4.4 (colonne B) par un profil lorentzien (formule 3.19).

On observe un accord satisfaisant (Fig. 4.6) ce qui justifie *a posteriori* l'ajustement lorentzien. On a alors accès indépendamment aux deux paramètres qui gouvernent la production de l'écho AFC, *i.e.* le maximum d'absorption et la finesse du peigne. On définit la finesse par analogie avec un Fabry-Perot. Elle vaut $2\pi/\theta$ où θ définit alternativement la largeur des pics dans la formule 3.19. Nous avons dérivé précédemment une expression qui donne l'efficacité en fonction de ces deux paramètres (Eq. 3.24). On la trace en fonction de l'opacité maximum pour les différents profils d'absorption (Fig. 4.7.a).

On retrouve avec satisfaction les prédictions théoriques de la figure 4.5 (en noir). Cela n'est pas surprenant. Le traitement de la partie 4.4.1 est plus général, car il ne fait pas de supposition sur la forme des pics. Dans la mesure où le choix d'un ajustement lorentzien représente bien les profils d'absorptions expérimentaux, les deux approches doivent donner les mêmes prédictions pour l'efficacité (en noir figure 4.5 et en rouge sur 4.7). Ces deux courbes se superposent bien, même si on ne les a pas représentées sur la même figure afin de garder comme référence les mesures expérimentales.

On peut finalement se poser la question de l'optimisation de l'efficacité. On a vu précédemment que pour une opacité donnée, il fallait bien choisir la finesse du peigne pour maximiser l'efficacité. La tendance générale est claire : lorsque l'opacité augmente, le peigne doit être de plus en plus fin. On voit rapidement que les différents profils obtenus ne respectent pas cette tendance générale (Fig. 4.7.b). On observe au contraire que la finesse atteint un maximum avant de décroître à nouveau. On peut être plus quantitatif en comparant les résultats expérimentaux à la finesse (Fig. 4.7.b en noir) et l'efficacité optimum η_{max} (Fig. 4.7.a en noir) comme calculé précédemment (eq. 3.25). La finesse obtenue ne semble clairement pas optimisée (Fig. 4.7.b). Malgré cela, l'efficacité reste proche du maximum prévu à faible opacité (inférieure à 2). L'efficacité est en effet beaucoup moins sensible à la finesse lorsque l'absorption reste faible. En revanche, pour une épaisseur de 3 environ, l'efficacité « décroche » de son optimum, car la finesse ne vaut que ≈ 3 alors qu'elle devrait valoir ≈ 6 pour maximiser l'écho. En conclusion, notre analyse de l'efficacité en fonction des différents profils d'absorption nous assure une bonne compréhension de la génération de l'écho. On voit en revanche que la séquence de préparation simple que nous avons choisie ne permet pas d'optimiser l'efficacité pour des épaisseurs optiques même modérées (≈ 3). Ce point mérite discussion.

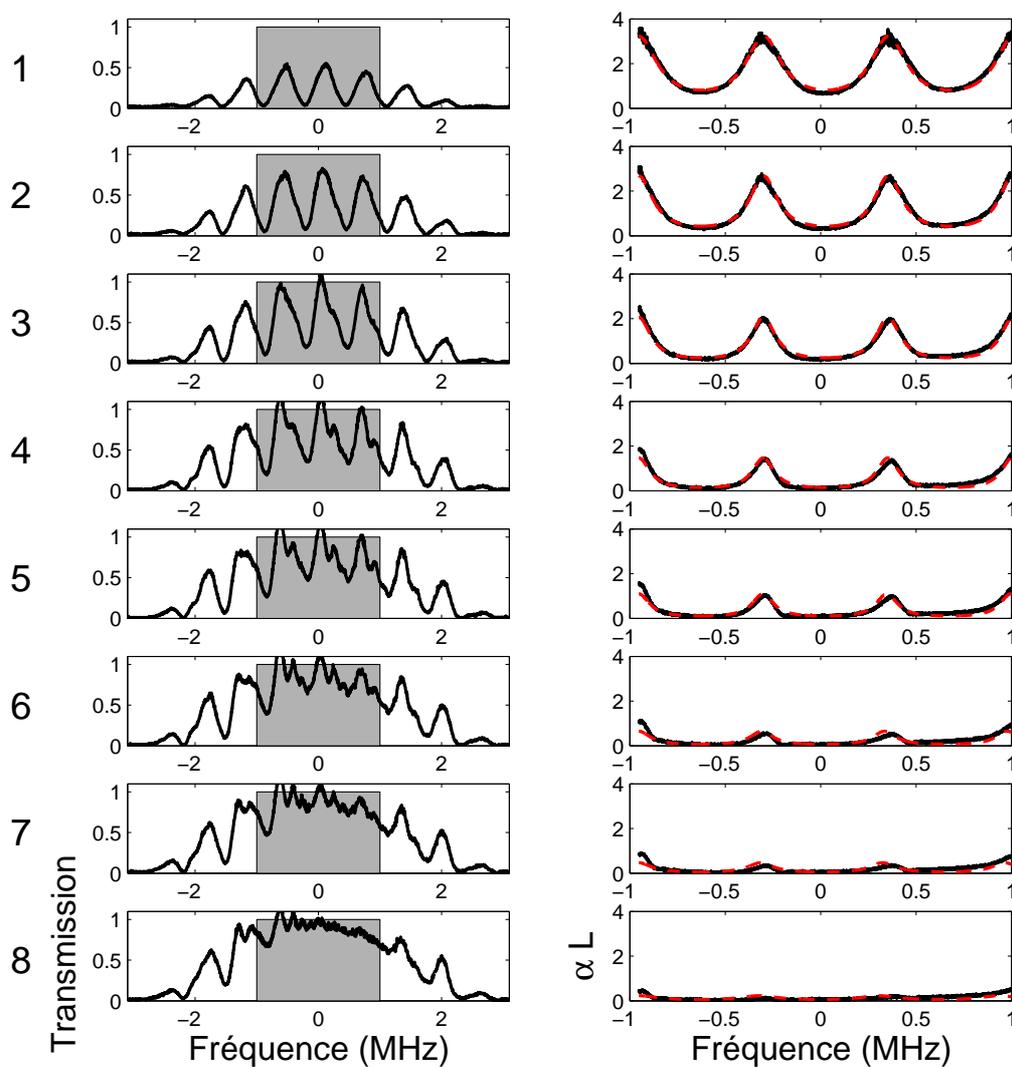


FIG. 4.6 – Colonne de gauche : rappel du profil de transmission (Fig. 4.4, colonne A) pour différentes puissances de la séquence de préparation. Colonne de droite : Ajustement des profils d'absorption (Fig. 4.4, colonne B) par une série de pics lorentziens (ligne pointillée rouge).

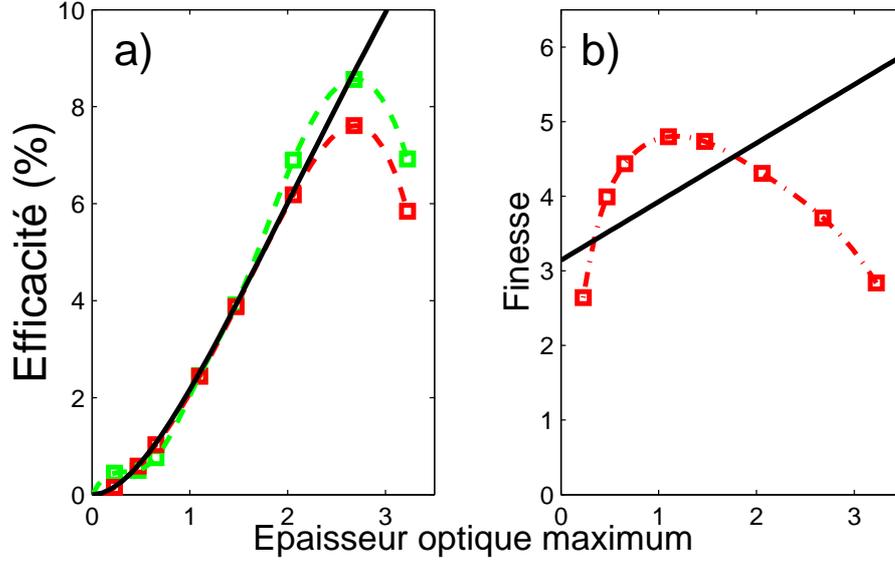


FIG. 4.7 – a) Calcul de l’efficacité (en rouge) après un ajustement lorentzien des dents du peigne (Fig. 4.6). Les valeurs expérimentales sont à nouveau représentées en vert. b) Finesse des peignes issue de l’ajustement lorentzien. En noir, valeurs de l’efficacité (en a) et de la finesse (en b) qui pour une opacité donnée maximise la production de l’écho.

4.5 Conclusion - Discussion

L’observation d’un écho (Fig. 4.4) est un résultat important. L’efficacité de 9% est bonne par rapport aux techniques d’écho de photon qui reste au niveau du %. C’est aussi un ordre de grandeur plus important que ce qui avait été observé par Riedmatten *et al.* pour l’AFC [39]. Ce résultat montre tout l’intérêt que peut avoir le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Comme cela avait été pressenti en introduction (4.1), sa faible largeur homogène permet une très bonne résolution spectrale pendant la séquence de préparation. Par ailleurs, l’utilisation d’un laser stabilisé au kHz permet de profiter pleinement de la largeur étroite du matériau. Ces deux caractéristiques, l’une intrinsèque au cristal et l’autre technique, permettent de graver un peigne bien contrasté, ce qui assure une bonne efficacité globale.

Le modèle que nous avons développé pour rendre compte de l’expérience reproduit bien les résultats. Il nous a aussi permis de comparer la mesure de l’efficacité avec l’optimum que l’on peut espérer en fonction de l’opacité disponible (voir Fig. 4.7). On réalise ainsi qu’il est difficile de préparer correctement le peigne à forte opacité où l’efficacité est la meilleure. Ceci est un peu frustrant, car l’absorption disponible du cristal est initialement de $\alpha L \approx 5$. Ce bilan traduit simplement la difficulté de préparer le peigne avec une séquence élémentaire (paire d’impulsions) lorsque le milieu est très absorbant. On peut effet prendre un point de vue différent pour expliquer cette limitation.

À forte opacité, préparer le « bon » peigne signifie contrôler à la fois le contraste des pics et leur largeur, qui sont les deux paramètres critiques. Notre séquence de préparation n'offre qu'un degré de liberté *i.e.* la puissance des paires. On ne peut donc pas contrôler indépendamment les deux paramètres du peigne. Ce constat nous donne aussi un début de solution. Il est possible d'enrichir la séquence de préparation d'impulsions multiples. On aura ainsi accès à un nouveau degré de liberté pour maîtriser la forme du peigne. D'un autre point de vue, on modifie le spectre du pompage optique. Cette solution a été mise en œuvre par M. Bonarota lors de sa thèse [52]. Il a pu démontrer un gain significatif de l'efficacité (jusqu'à 17%) en creusant un peigne à dents quasi-rectangulaires, plutôt que quasi-lorentziennes.

Concernant la relation entre le spectre de pompage optique et la forme finale du peigne, nous en sommes restés à une approche intuitive, en se disant simplement que les parties les plus brillantes du spectre correspondront à des trous profonds dans l'absorption. Une étude plus quantitative doit maintenant être menée. On devrait pouvoir quantifier plus précisément les effets d'élargissement par saturation dont on a vu l'impact sur le peigne (voir Fig. 4.4). Une meilleure prise en compte de la dynamique du pompage optique devrait nous permettre de prédire les courbes (4.7).

Pour conclure, et même si on peut se satisfaire de notre compréhension de l'AFC à partir d'un modèle théorique convaincant, un travail de réflexion sur l'AFC en tant que protocole de stockage s'impose. L'AFC possède des points communs indéniables avec le CRIB. La génération d'un écho peut être interprétée comme des rephasages successifs sur la sphère de Bloch. On peut aussi noter des similarités surprenantes avec les protocoles basés sur la « lumière lente » avec en tête la transparence induite électromagnétiquement (pour une revue voir [60]). Un effet de dispersion induit un ralentissement de la lumière qui est la base du stockage du champ par le milieu atomique [61]. Une forte dispersion est aussi présente dans l'AFC à cause des fenêtres de transparence entre les pics du peigne. On observe en conséquence un ralentissement de l'impulsion transmise : sur la Fig. 4.4 (colonne C), on voit un décalage par rapport à l'impulsion de référence (en noir). Une réflexion globale sur les protocoles doit donc être menée afin de comprendre le rapport ambivalent entre absorption et dispersion. On pourrait ainsi aboutir à une classification comparative des protocoles, qui sera sans doute une source d'inspiration pour en concevoir de nouveaux.

Conclusion générale

Nous avons présenté les travaux de thèse effectués en vue de réaliser le stockage et la restitution d'un photon unique. Ce projet recouvre des réalités physiques très vastes. Nous avons choisi de considérer un système atomique macroscopique, impliquant le stockage de l'information lumineuse dans un état collectif de la matière. Il s'agit d'une alternative intéressante à d'autres types de systèmes, comme les atomes uniques en cavité ou les ions piégés, tels que ceux étudiés dans [62]. Plus précisément, notre choix s'est porté sur les ions de terre rare en matrice cristalline, et ce pour trois raisons qui sont autant d'avantages vis-à-vis des vapeurs atomiques. Tout d'abord, étant immobiles, ils sont protégés de la décohérence due aux collisions qui se produit dans ces dernières. Pour la même raison, chaque ion voit toujours le même champ, et on évite ainsi la perte d'information due au transit des centres actifs hors du faisceau laser. Enfin, une fois refroidi à des températures cryogéniques, le cristal dopé offre une longue durée de vie pour les cohérences optiques. Le recours à un troisième niveau atomique afin de créer des cohérences Raman, de plus longue durée de vie, n'est donc pas indispensable.

Ces propriétés nous ont permis d'envisager les transitoires cohérents optiques dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ comme protocoles de mémoires quantiques potentiels. Il s'agit d'une alternative à d'autres types d'interaction lumière-matière comme l'EIT [4][5], qui a été étudié dans ce sens et a permis la première démonstration d'une mémoire quantique à l'échelle du photon unique dans une vapeur froide [7].

Nous sommes partis du transitoire optique cohérent le plus simple à mettre en œuvre, à savoir l'écho de photon à deux impulsions. Nous nous sommes autant que possible approchés des conditions de stockage quantique, et avons mis en évidence, tant du point de vue théorique qu'expérimental, les limites fondamentales d'un tel processus envisagé comme protocole de mémoire quantique. La plus grande d'entre elles est certainement l'inversion du milieu atomique produite par l'impulsion de rephasage, qui induit un bruit d'émission spontanée ainsi que de l'amplification.

Néanmoins, l'étude des échos à deux impulsions en signal atténué menée aux chapitres 1 et 2 nous a servi de base de travail pour envisager d'autres processus d'échos photoniques dérivés du premier. Parmi ceux-ci, les protocoles issus de l'idée originale

de Moiseev [24] ont fait l'objet d'une étude de principe au 3^{me} chapitre. Nous avons clairement mis en évidence comment le remplacement de l'impulsion de rephasage par une autre méthode de renversement de l'évolution des cohérences permettait d'éviter les problèmes majeurs soulevés plus haut.

Afin de nous affranchir du compromis entre efficacité de restitution et bande-passante soulevé par ces protocoles basés sur le renversement du profil d'absorption inhomogène d'une transition à deux niveaux, nous nous sommes plus particulièrement intéressés au phénomène d'écho AFC. Tout comme l'écho de photon standard, il est issu d'un rephasage des cohérences atomiques. Mais à la différence de ses prédécesseurs, il ne requiert ni impulsion de rephasage, ni modification du profil d'absorption après l'interaction de l'impulsion à stocker avec le milieu atomique. Cela est dû à la structuration du profil d'absorption inhomogène de la transition considérée en peigne de fréquence à dents fines. Nous avons proposé au chapitre 3 une méthode systématique d'étude de l'efficacité de restitution théorique pour différentes formes de peigne. Cette étude constitue les premiers travaux de thèse de Matthieu Bonarota au sein du LAC. Elle nous permet d'ores et déjà de voir que le peigne à dents rectangulaires présente une efficacité théorique optimale. Conjointement à cette étude, nous avons mené des expériences d'échos AFC qui ont nécessité plusieurs modifications du montage initial dédié aux échos à deux impulsions, comme cela est présenté au dernier chapitre. Nous sommes en particulier parvenus à utiliser un sous-niveau Zeeman comme niveau relais pour le pompage optique du peigne. Les résultats obtenus confirment un bon accord avec les prédictions théoriques du chapitre précédent. Notamment, les efficacités observées sont plus élevées que celles obtenues par Riedmatten *et al.* dans le $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$ [39].

Ces derniers travaux sur les échos AFC ouvrent des perspectives dans trois axes de recherche, dont deux ont déjà été discutés en conclusion du dernier chapitre. Il s'agit de l'atténuation des impulsions de signal jusqu'au régime de comptage de photons et de l'aspect multimode du stockage de telles impulsions. Ces deux axes sont actuellement explorés par Matthieu Bonarota dans le cadre de sa thèse, et donnent déjà des résultats prometteurs [55][52].

Le dernier axe consiste en l'implémentation expérimentale du protocole d'AFC complet avec émission de l'écho vers l'arrière. Elle nécessite encore de nombreux développements expérimentaux, et l'obstacle majeur pour son implémentation dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ est de trouver un niveau de stockage convenable pour les cohérences Raman. La solution à ce problème consistera peut-être à changer de matrice cristalline pour les ions Tm^{3+} , afin d'extraire plus facilement un état quadruplet pour le niveau fondamental. Qui plus est, la possibilité de réaliser le protocole complet dans un cristal dopé aux ions lanthanides

(Pr³⁺ :YSO en l'occurrence) a été prouvée par les auteurs de [63]. Conjointement avec les aspects de large bande-passante et de fonctionnement à l'échelle du photon unique, la propagation vers l'arrière permettrait de se rapprocher de manière satisfaisante des critères de fidélité d'une mémoire quantique multimode.

Annexe A

Pompage d'un peigne AFC par des paires d'impulsions - Spectre de pompe sinusoïdal

Sommaire

A.1 Introduction	97
A.2 Pompage périodique résonnant d'un système à trois niveaux	98
A.3 Pompage par un spectre sinusoïdal	100
A.4 Effets de la largeur homogène sur le peigne	102

A.1 Introduction

La méthode impulsionnelle de pompage optique illustrée sur la figure 4.3 consiste à envoyer une série d'impulsions qui correspondent à la transformée de Fourier temporelle du spectre en fréquence que l'on veut graver. En l'occurrence, une paire d'impulsions gaussiennes de durée τ_P , courte devant la durée T qui les sépare, équivaut à deux pics de Dirac convolués à une courbe gaussienne. Ceci correspond dans le domaine des fréquences à une sinusoïde de période $\Delta_0 = 1/T$ modulée par une enveloppe gaussienne de largeur $1/\tau_P$. Ce spectre ne donne cependant pas directement le peigne final, qui résulte de l'interaction des impulsions de pompage avec le système à trois niveaux excité. Voyons dans un premier temps ce qu'il en est pour un pompage optique périodique résonnant d'un système à trois niveaux.

A.2 Pompage périodique résonnant d'un système à trois niveaux

Nous décrivons la dynamique d'un système à trois niveaux $|a\rangle$, $|b\rangle$, $|c\rangle$, disposés en Λ . On appliquera ensuite le modèle au système formé par les niveaux 3H_4 ($|b\rangle$), 3H_6 , $m_I = -1/2$ ($|a\rangle$) et 3H_6 , $m_I = +1/2$ ($|c\rangle$). Comme on peut le voir sur le schéma de niveaux présenté figure 4.1, la durée de vie de 3F_4 (10ms) est bien inférieure à celle de l'état $|c\rangle$, et on peut donc négliger son influence lors du pompage. Une impulsion de pompe de durée τ_P , très courte par rapport à tous les temps mis en jeu, excite de façon périodique et résonnante la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$ avec un taux de pompage effectif noté P_0 . On note $n_i(t)$ les populations $\rho_{ii}(t)$, T_1 la durée de vie du niveau excité $|b\rangle$, et r le rapport de branchement de la relaxation de $|b\rangle$ vers $|a\rangle$. Cela implique un taux de relaxation $(1-r)\gamma_b$ vers $|c\rangle$, qui prend éventuellement en compte le canal de désexcitation indirect vers 3F_4 . On suppose également que les niveaux $|c\rangle$ et $|a\rangle$ sont suffisamment proches en énergie pour se thermaliser, avec un temps caractéristique T_0^1 (cf. fig.A.1).

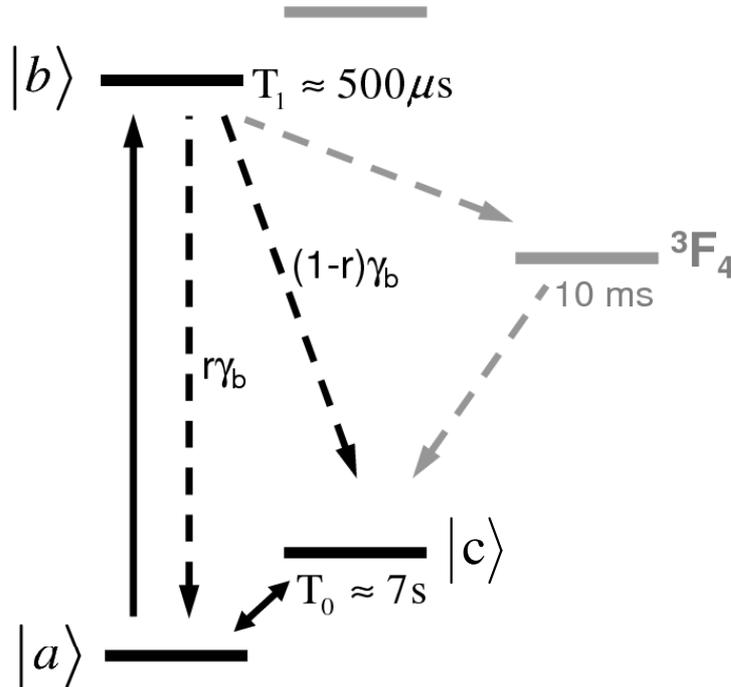


FIG. A.1 – Schéma de niveaux illustrant le mécanisme de pompage optique. Trois niveaux y participent essentiellement, la contribution de 3F_4 pouvant être prise en compte dans le rapport de branchement r . C'est la durée de vie la plus longue (T_0 ici) qui fixe la durée du pompage.

¹ En pratique, nous utilisons deux sous-niveaux d'un même multiplet Zeeman.

Les équations de taux s'écrivent donc :

$$\begin{aligned}
 \dot{n}_a(t) &= \frac{P_0}{2}[n_b(t) - n_a(t)] + \frac{n_c(t) - n_a(t)}{T_0} + \frac{rn_b(t)}{T_1} \\
 \dot{n}_b(t) &= -\frac{P_0}{2}[n_b(t) - n_a(t)] - \frac{n_b(t)}{T_1} \\
 \dot{n}_c(t) &= \frac{n_a(t) - n_c(t)}{T_0} + \frac{(1-r)n_b(t)}{T_1},
 \end{aligned} \tag{A.1}$$

On résout ce système d'équations de taux en supposant que les impulsions de pompage, entretiennent des oscillations de relaxation de faible amplitude pour les populations. Ainsi, la relaxation entre deux séquences de pompe est exactement compensée par le pompage effectué pendant une durée τ_P beaucoup plus courte que tous les autres temps caractéristiques du système. On observe alors en pratique l'établissement d'un régime quasi-stationnaire. Le système (A.1) devient :

$$\begin{aligned}
 0 &= \frac{P_0}{2}[n_{bS} - n_{aS}] + \frac{n_{cS} - n_{aS}}{T_0} + \frac{rn_{bS}}{T_1} \\
 0 &= -\frac{P_0}{2}[n_{bS} - n_{aS}] - \frac{n_{bS}}{T_1} \\
 0 &= \frac{n_{aS} - n_{cS}}{T_0} + \frac{(1-r)n_{bS}}{T_1},
 \end{aligned} \tag{A.2}$$

avec n_{iS} l'état stationnaire atteint pour $n_i(t)$, avant la relaxation complète de $|b\rangle$ suivant l'arrêt du pompage. En prenant en compte le fait que les trois niveaux constituent un système fermé ($n_a(t) + n_b(t) + n_c(t) = 1$), on se ramène immédiatement au système suivant pour (n_{aS}, n_{bS}) :

$$\begin{aligned}
 0 &= \frac{P_0}{2}[n_{bS} - n_{aS}] + \frac{n_{bS}}{T_1} \\
 0 &= \frac{2n_{aS} + n_{bS} - 1}{T_0} + \frac{(1-r)n_{bS}}{T_1}.
 \end{aligned} \tag{A.3}$$

La résolution de ce système algébrique conduit à :

$$\begin{aligned}
 n_{aS} &= \frac{T_1 P_0 + 2}{\frac{T_1 P_0}{\varepsilon} + 4} \\
 n_{bS} &= \frac{T_1 P_0}{\frac{T_1 P_0}{\varepsilon} + 4},
 \end{aligned} \tag{A.4}$$

avec $\varepsilon = \left(3 + \frac{(1-r)T_0}{T_1}\right)^{-1}$ un paramètre ne dépendant que du système atomique considéré. Dans le cadre du stockage quantique, on doit éviter la pollution du signal par émission

spontanée. Cela implique qu'il n'y ait plus de population dans le niveau excité. On attend donc la relaxation complète de ce dernier avec un taux donné par r (au bout d'un temps t_R après l'arrêt du pompage), et on obtient :

$$n_{af} = n_{aS} + rn_{bS} = \frac{(1+r)T_1P_0 + 2}{\frac{T_1P_0}{\varepsilon} + 4} . \quad (\text{A.5})$$

A ce terme de population final est naturellement associée une absorption pour la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$, qui vaut :

$$\alpha = 2\alpha_0 n_{af} . \quad (\text{A.6})$$

Le facteur 2 dans l'expression de α tient compte du fait qu'au repos, les système atomique se thermalise pour atteindre la configuration d'équilibre $n_a(t > T_0) = n_c(t > T_0) = 1/2$.

Le trou spectral obtenu, d'une durée de vie égale à celle du niveau $|c\rangle$, ne se caractérise ici que par sa profondeur. En effet, le pompage étant strictement monochromatique, et γ_{ab} étant négligé, il n'y a pas d'élargissement par saturation de la transition, et on creuse un trou de largeur spectrale nulle. La profondeur du trou augmente évidemment avec le taux de pompage P_0 , et sera d'autant plus grande que ε est faible, comme on peut le voir à P_0 élevé, où on a $\alpha \sim 2\alpha_0\varepsilon(1+r)$. Ainsi, ε caractérise la qualité du pompage optique, et pour un rapport de branchement r donné, la condition $T_0 \gg T_1$ le fait tendre vers zéro. Autrement dit, les atomes qui s'accumulent dans $|c\rangle$ n'absorbent plus.

Armés de ces observations, nous pouvons généraliser cette analyse rudimentaire à un spectre de pompe plus complexe, capable de créer un peigne d'absorption dans la transition à élargissement inhomogène. On introduira donc un taux de pompage et une absorption dépendant de la fréquence. On négligera cependant à nouveau la largeur homogène de la transition pour l'instant.

A.3 Pompage par un spectre sinusoïdal

Nous considérons à présent la séquence présentée en fig. 4.3. Elle est constituée de paires d'impulsions courtes de durée τ_P , séparées d'une durée $t_{12}=T$. On répète cette séquence après un temps t_r , et ce pendant une durée T_{prep} . On note $\tilde{\Omega}_P$ le maximum de la transformée de Fourier de la fréquence de Rabi $\tilde{\Omega}_P(t)$ associée au champ de pompe. On a supposé ici que $T \ll t_r$, et donc que $T_{prep}/N_{prep} = T + t_r \approx t_r$. Ce temps de relaxation est choisi tel que $t_r \geq 1/\gamma_{ab}$, ce qui permet aux cohérences optiques $\rho_{ab}(t)$ de relaxer, et donc de ne pas avoir d'effets interférentiels entre les paires d'impulsions. Autrement dit, aucun motif spectral supplémentaire n'est créé du fait de la répétition des paires d'impulsions,

qui ne sert qu'à accumuler les populations dans le niveau $|c\rangle$.

Pour le moment, l'expression du taux de pompage moyen $P_{\sin}(\delta_L)$, avec $\delta_L = \omega_{ab} - \omega_L$, est calculée sans prendre en compte la convolution du spectre d'une paire d'impulsions par le profil homogène de la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$, que l'on assimile à une distribution de Dirac. On peut alors montrer que la relation entre la différence de population $\Delta n(t) = \rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t) = n_b(t) - n_a(t)$ avant ($\Delta n(t_0)$) et après ($\Delta n(t_0 + T + \tau_P)$) le passage d'une paire d'impulsions est donnée par :

$$\Delta n(t_0 + T + \tau_P) = \Delta n(t_0) \left(1 - \frac{|\tilde{\Omega}_P(\delta_L)|^2}{2} \right), \quad (\text{A.7})$$

On introduit un taux de pompage effectif sélectif en fréquence en posant $P_{\sin}(\delta_L) = |\tilde{\Omega}_P(\delta_L)|^2/t_r$. On aboutit alors à :

$$P_{\sin}(\delta_L) = \frac{\tilde{\Omega}_P^2}{t_r} e^{-(\tau_P \delta_L)^2} [1 + \cos(\delta_L T)]. \quad (\text{A.8})$$

Il suffit alors de remplacer dans (A.1) le taux P_0 par $P_{\sin}(\delta_L)$ pour obtenir les nouvelles équations de taux :

$$\begin{aligned} \dot{n}_a(t) &= \frac{P_{\sin}(\delta_L)}{2} [n_b(t) - n_a(t)] + \frac{n_c(t) - n_a(t)}{T_0} + \frac{rn_b(t)}{T_1} \\ \dot{n}_b(t) &= -\frac{P_{\sin}(\delta_L)}{2} [n_b(t) - n_a(t)] - \frac{n_b(t)}{T_1} \\ \dot{n}_c(t) &= \frac{n_a(t) - n_c(t)}{T_0} + \frac{(1-r)n_b(t)}{T_1} + \frac{P_F(\delta'_L)}{2} [n_b(t) - n_c(t)], \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Le taux de pompage supplémentaire $P_F(\delta'_L)$ est défini exactement comme $P_{\sin}(\delta_L)$, si ce n'est qu'il concerne les fuites du pompage optique sur la transition $|c\rangle \leftrightarrow |b\rangle$. Il vaut donc :

$P_F(\delta'_L) = \frac{\tilde{\Omega}_P^2}{t_r} e^{-(\tau_P \delta'_L)^2} [1 + e^{-\gamma_{ab} T} \cos(\delta'_L T)]$, avec $\delta'_L = \omega_{cb} - \omega_L$. On le prendra nul en supposant que $|aux\rangle$ est loin de résonance, même si ce n'est pas toujours le cas en pratique². Tout comme précédemment, on considère ici un milieu atomique de faible opacité (typiquement $\alpha L \sim 1$), ce qui permet de négliger la variation du taux de pompage en fonction de la propagation (z) dans (A.9). La prise en compte de la propagation du peigne de fréquence, non soluble analytiquement, nécessite un traitement numérique.

Afin de se placer en régime permanent pour les populations, on répète suffisamment de fois la séquence des N_{prep} paires suivies du temps t_R (cf. fig. 4.3, où $N_{prep}=5000$), pour qu'elle dure de l'ordre de T_0 , le plus grand des temps caractéristiques du problème. Le temps de relaxation t_R a pour but de laisser relaxer le niveau excité $|b\rangle$ après l'absorption

² voir la discussion sur le pompage croisé et les peignes latéraux qui en résultent en 4.3.3.

des N_{prep} paires. On se place donc en régime stationnaire pour les populations, tout en négligeant les fuites du pompage optique $P_F(\delta'_L)$. Le système (A.9) devient alors :

$$\begin{aligned} 0 &= \frac{P_{\sin}(\delta_L)}{2}[n_{bS} - n_{aS}] + \frac{n_{cS} - n_{aS}}{T_0} + \frac{rn_{bS}}{T_1} \\ 0 &= -\frac{P_{\sin}(\delta_L)}{2}[n_{bS} - n_{aS}] - \frac{n_{bS}}{T_1} \\ 0 &= \frac{n_{aS} - n_{cS}}{T_0} + \frac{(1-r)n_{bS}}{T_1}, \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

ce qui est exactement l'équivalent de (A.2) pour un spectre polychromatique. Les mêmes étapes de résolution qu'au paragraphe précédent conduisent donc à un profil d'absorption structuré en peigne :

$$\alpha_{AFC}(\delta_L) = 2\alpha_0 n_{af}(\delta_L), \quad (\text{A.11})$$

avec les populations finales du niveau $|a\rangle$:

$$n_{af}(\delta_L) = n_{aS} + rn_{bS} = \frac{(1+r)T_1 P_{\sin}(\delta_L) + 2}{\frac{T_1 P_{\sin}(\delta_L)}{\varepsilon} + 4}. \quad (\text{A.12})$$

Une illustration de ce peigne de fréquences pour des paramètres atomiques et de champ de pompe réalistes est visible figure A.2. On imprime sans surprise le spectre optique, porté par les paires d'impulsions, dans les populations. Une fois encore, ε fixe la valeur des minima d'absorption, mais cette fois uniquement entre les dents du peigne. Idéalement, celles-ci sont intégralement préservées par le pompage (cf. courbe en pointillés noirs, fig. A.2).

Afin de reproduire au mieux l'allure des peignes obtenus expérimentalement, nous allons à présent tenir compte de la largeur homogène finie de la transition $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$ dans la formation du peigne. Cette dernière est essentielle, car elle donne la résolution de gravure lors du mécanisme de pompage optique.

A.4 Effets de la largeur homogène sur le peigne

Nous reprenons une démarche identique à celle du paragraphe précédent, avec cette fois un taux de pompage $P_1(\delta_L)$ qui inclut la largeur homogène γ_{ab} finie de la transition excitée. Cela se fait en remplaçant, dans (A.7), $|\tilde{\Omega}_P(\delta_L)|^2$ par :

$$R_1(\delta_L) = \left| \tilde{\Omega}_P(\delta_L) \right|^2 \otimes \mathcal{L}_{\gamma_1}(\delta_L), \quad (\text{A.13})$$

avec $\mathcal{L}_{\gamma_1}(\omega) = \frac{2\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + \omega^2}$ une courbe lorentzienne représentant le profil homogène de $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$. En posant $P_1(\delta_L) = R_1(\delta_L)/t_r$ et en calculant le produit de convolution de (A.13), on aboutit à l'expression de $P_1(\delta_L)$:

$$P_1(\delta_L) = \frac{\tilde{\Omega}_P^2}{t_r} e^{-(\tau_P \delta_L)^2} [1 + e^{-\gamma_{ab} T} \cos(\delta_L T)] . \quad (\text{A.14})$$

On constate ainsi une seule différence par rapport au cas précédent, à savoir la présence d'un terme de contraste $e^{-\gamma_{ab} T}$ pour les oscillations du taux de pompage. Ainsi, les équations de taux sont les mêmes, et on obtient finalement pour le peigne :

$$\alpha_{AFC}(\delta_L) = 2\alpha_0 \frac{(1+r)T_1 P_1(\delta_L) + 2}{\frac{T_1 P_1(\delta_L)}{\varepsilon} + 4} . \quad (\text{A.15})$$

Tout comme le peigne trouvé précédemment (A.11), celui-ci est représenté figure A.2.

On y voit l'allure générale des peignes de fréquence gravés via la séquence impulsionnelle. On constate que le contraste des dents du peigne est ici déterminé essentiellement par trois paramètres, qui sont ε , γ_{ab} et τ_P . Le premier détermine l'ordre de grandeur des minima de α_{AFC} pour un taux de pompage suffisamment élevé, le second fixe la valeur des maxima, et le dernier joue à la fois sur les maxima et les minima. Néanmoins, si l'on ne considère que la partie centrale du peigne qui sera effectivement excitée par le signal à stocker, on peut négliger la dépendance en $e^{-(\tau_P \delta_L)^2}$ (terme d'enveloppe) pour le peigne. Quant au taux de pompage $P_1^{(0)} = \frac{\tilde{\Omega}_P^2}{t_r}$, il intervient de deux manières dans l'allure du peigne. Pour une faible valeur de γ_{ab} , son augmentation tend à affiner les pics d'absorption, via le phénomène d'élargissement par saturation des zones spectrales pompées (cf. fig. A.2). Pour une valeur plus élevée de la largeur homogène, les pics sont rongés par saturation, et on retrouve l'effet de γ_{ab} sur les maxima du peigne [64].

Ainsi, nous avons donné une expression analytique pour le profil du peigne pompé par des paires d'impulsions. Elle reproduit bien les spectres expérimentaux obtenus au dernier chapitre, et nous rassure sur la compréhension de la dynamique de pompage.

Cette expression s'avère néanmoins lourde comparée à celle du peigne à dents lorentziennes équivalent proposé au chapitre 4, qui permet généralement un bon ajustement des spectres expérimentaux. On a ainsi directement accès à une expression analytique de l'efficacité de restitution de l'écho AFC par un tel peigne (voir 4.4.2).

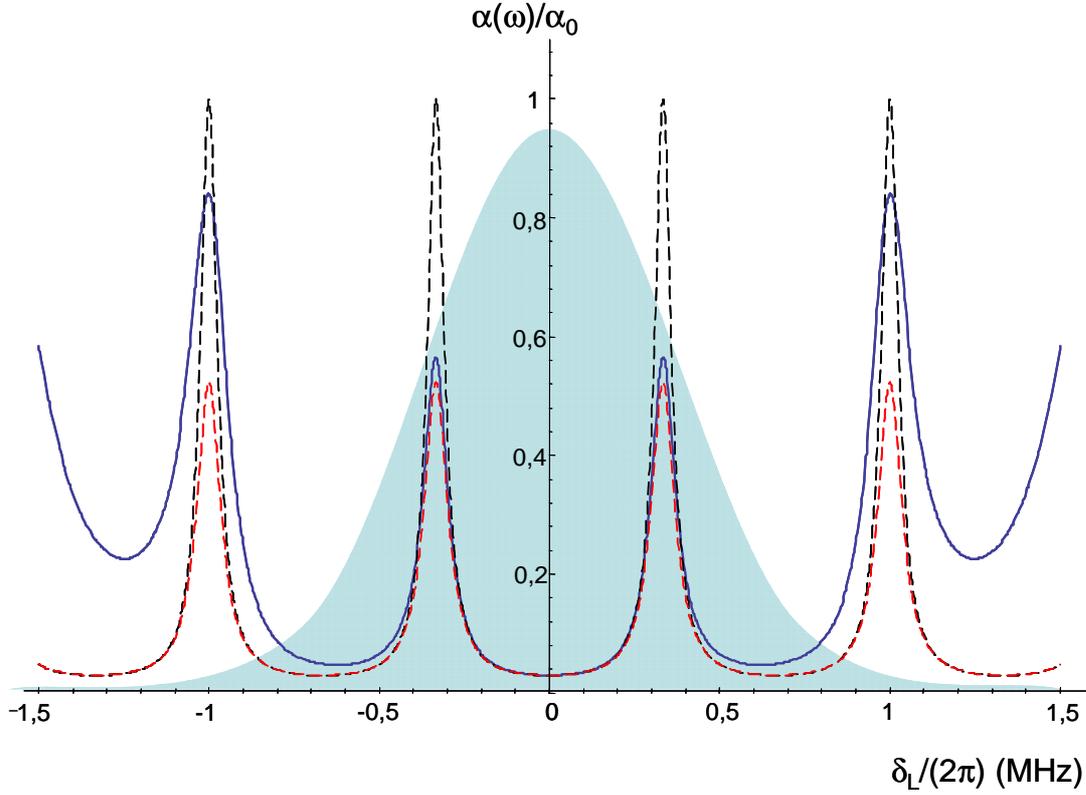


FIG. A.2 – Exemple de peignes d'absorption obtenus par la méthode impulsionnelle.

En pointillés noirs : peigne d'absorption obtenu pour une largeur homogène (γ_{ab}) et une durée d'impulsions de pompe (τ_P) tendant vers zéro. On observe que le contraste est maximal, uniquement limité par les minima du peigne : $\alpha_{min} \sim \alpha_0(1+r)\varepsilon$, pour un taux de pompage $P_{sin}^{(0)} = \frac{\tilde{\Omega}_P^2}{t_r}$ suffisamment élevé (élargissement par saturation du spectre de pompe). Les paramètres utilisés ici sont : $P_{sin}^{(0)} = 500Hz$, $T = 1.5\mu s$, $r = 0.98$, $T_1 = 0.5ms$, $T_0 = 10s$.

En pointillés rouges : peigne obtenu pour une largeur homogène non nulle ($\gamma_{ab} = (2\pi)4kHz$), tous les autres paramètres étant inchangés. L'effet de cet élargissement homogène est de réduire le contraste des pics du peigne en rongant les bords des zones spectrales pompées (effet de convolution). Cependant, seuls les maxima de $\alpha(\omega)$ sont affectés, les minima restant proches de $\alpha_0(1+r)\varepsilon$.

En trait plein : peigne d'absorption final obtenu pour une durée d'impulsions de pompe $\tau_P = 200ns$, tous les autres paramètres étant inchangés. On observe comme prévu que l'efficacité de pompage diminue à mesure qu'on s'éloigne de la résonance ($\delta_L = 0$). Ce phénomène affecte à la fois les maxima et les minima de $\alpha_{AFC}(\delta_L)$, qui augmentent simultanément. On prend tout de même soin d'envoyer ensuite une impulsion à stocker dont la largeur spectrale ω_S (zone bleue ciel) correspond aux dents centrales du peigne (les plus contrastées). Dans ce cas, on peut se contenter, pour étudier le rephasage AFC, de supposer le peigne strictement périodique (courbe pointillée rouge).

Annexe B

Article sur la propagation cohérente des impulsions fortes

Ci-après est présenté l'article [14] tel qu'il a été publié dans le *Journal of Optical Society of America B*.

Coherent response to optical excitation in a strongly absorbing rare-earth ion-doped crystal

J. Ruggiero, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët*

Laboratoire Aimé Cotton, Bâtiment 505, Campus Universitaire, 91405 Orsay Cedex, France

*Corresponding author: jean-louis.legouet@lac.u-psud.fr

Received September 14, 2009; accepted October 27, 2009;
posted October 29, 2009 (Doc. ID 117087); published December 11, 2009

We investigate coherent propagation through a large optical density Tm^{3+} :YAG crystal. Using an ultrastable laser, fiber filtering, and site selection, we investigate the transmitted pulse temporal profile. The plane-wave condition is satisfied by selection of the illuminated-spot central area. We pay special attention to π pulse transmission in the prospect of implementing optical quantum storage protocols. © 2009 Optical Society of America

OCIS codes: 020.1670, 160.5690, 190.5530, 270.6630.

1. INTRODUCTION

The coherent response to optical excitation has been investigated for a long time. Actually, mere linear absorption of an optical beam through a material slab represents the most elementary manifestation of this feature. Indeed, the transmitted beam results from a coherent combination of the incident field and the instantaneous material response. It has also been realized early that a coherent optical response is related to the collective quantum excitation of an atomic ensemble. As pointed out by R. Dicke [1], *all the molecules are interacting with a common radiation field and hence cannot be treated as independent*. However, a semiclassical treatment is generally adequate to describe the coherent response [1], especially if the number of atoms per λ cube is small enough so that superfluorescence cannot start up on the experiment time scale [2]. In the framework of the semiclassical description, McCall and Hahn were able to derive an area theorem that accounts for the propagation of an arbitrary intensity pulse through an arbitrary optical density slab [3], giving rise to the notion of self-induced transparency (SIT). To be coherent, the process must take place on a time scale much shorter than the atomic superposition state lifetime. Experimental demonstration in the nanosecond range was performed at once in both solids and atomic vapors at room temperature [3–5]. The McCall and Hahn theorem only predicts the pulse area behavior. For a more detailed description, especially to investigate the pulse deformation, one has to solve the Maxwell–Bloch (MB) equation numerically.

The connection with solitons has stimulated interest in SIT. It was shown [6] that a 2π area pulse with a hyperbolic secant temporal profile can propagate without alteration through an absorbing medium. The breakdown of large area pulses into 2π area components was also predicted [6] and observed [4,5]. A couple of decades later, the discovery of electromagnetically induced transparency (EIT) in ensembles of three-level atoms [7] renewed interest in the coherent response of optically thick media. Ac-

tually, a variety of induced transparency processes have been investigated in three-level systems [8,9]. The interplay of EIT with SIT was also considered [10,11]. In recent years, effort has been directed to the ultrashort pulse regime, where the usual assumptions, such as the rotating wave and slowly varying envelope approximations, may not be valid [12].

Rare-earth ion-doped crystals (REIC) represent an excellent test bed for coherent optical response investigation. Most of the limitations pointed out by Slusher in his review paper on SIT [13] are relaxed in these materials. The superposition state lifetime may reach hundreds of microseconds and is not limited by a transit time across the light beams. No diffusive motion can affect the spatial phase of the atomic states. The inhomogeneous broadening can be considered as infinite. Generally, the level degeneracy is completely lifted by the crystal field so that the ions behave as true two-level atoms on the propagation time scale. Other features depend on the specific host matrix. In yttrium aluminium garnet (YAG, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) for instance, the D_2 symmetry of substitution sites forbids the existence of permanent dipole moments. As a consequence, relaxation processes such as optical excitation-induced instantaneous spectral diffusion (ISD) are strongly reduced. In this matrix, appropriate crystal cutting and adequate polarization orientation make ions in different sites interact with the same dipole moment projection on the incoming field [14].

Coherent interactions in strongly absorbing REIC currently receive considerable attention due to prospects of these materials as a base for quantum memories. However, very few SIT coherent propagation data have been collected in REIC [15,16]. Reference [16] reports on experimental work in Tm^{3+} :YAG. However, inserting the sample in a cavity makes the quantitative analysis more difficult. In addition, coherent excitation conditions are not clearly satisfied since the laser is not stabilized. The same flaw affects the results in [11], where the interplay of EIT and SIT is evoked in the context of quantum stor-

age of light. In [15], propagation is investigated in Pr^{3+} :YSO. The laser is properly stabilized, but an unexpected low-transmission factor is observed.

In the present paper our aim is twofold. First, we reexamine the MB equation and propose a solution that analytically accounts for the instantaneous part of the atomic response. This fast component spreads over a broad spectral interval and complicates the numerical solution when the absorption line is strongly inhomogeneously broadened. Second, we present a detailed experimental investigation of coherent pulse propagation in a large optical density Tm^{3+} :YAG crystal at liquid helium temperature.

The paper is organized as follows. In Section 2 we present the original aspects of our MB equation solution. In Section 3 we review the main features of pulse propagation through a strongly absorbing medium as predicted by the MB equation. The experimental setup is described in Section 4. We present and discuss the experimental data in Section 5.

2. THE INSTANTANEOUS RESPONSE

The MB equation has been the object of intense theoretical and numerical investigation for many decades by both physicists and mathematicians. We do not intend to bring any new result in this extremely well-documented field. Instead, we rely on physical arguments in order to simplify the computation procedure. Specifically, we show that one can simply account for the contribution from atoms far from resonance. This way, the sum over the inhomogeneous width can be limited to a narrower spectral interval. To the best of our knowledge, this approach was not adopted before.

Let us consider a spatially and spectrally uniform distribution of two-level atoms. Spectral uniformity means that the inhomogeneous width of the optical transition is infinite. Let a monochromatic plane wave be directed to the sample. At the input side $z=0$, the electric field $E(z, t)$ reads as

$$E(0, t) = A(0, t)\cos(\omega_L t + \varphi), \quad (1)$$

where φ is time independent. Within the frame of the slowly varying amplitude (SVA) and rotating wave (RWA) approximations, the MB equations read as follows:

$$\partial_z \Omega(z, t) = -\frac{\alpha}{2\pi} \int d\omega_{ab} v(\omega_{ab}; z, t),$$

$$\partial_t u(\omega_{ab}; z, t) = -\Delta v(\omega_{ab}; z, t),$$

$$\partial_t v(\omega_{ab}; z, t) = -\Omega(z, t)w(\omega_{ab}; z, t) + \Delta u(\omega_{ab}; z, t),$$

$$\partial_t w(\omega_{ab}; z, t) = \Omega(z, t)v(\omega_{ab}; z, t), \quad (2)$$

where $\Delta = \omega_{ab} - \omega_L$, and where $\Omega(z, t)$, $u(\omega_{ab}; z, t)$, $v(\omega_{ab}; z, t)$, and $w(\omega_{ab}; z, t)$ represent the Rabi frequency and the components of the Bloch vector $B(\omega_{ab}; z, t)$, respectively. Let L represent the sample thickness. To further simplify the problem, we assume that the incoming pulse evolution characteristic time, i.e., the inverse spectral width $1/\Delta_p$, is much longer than L/c . Therefore we

can neglect the time derivative $\partial_t \Omega(z, t)/c$ in the wave equation.

To solve the equations numerically, one would like to get the spatial distribution $\Omega(z, t)$ at time t in terms of $\Omega(0, t)$, the boundary value at the sample input and of $B(\omega_{ab}; z, t - \tau)$, where $\tau \Delta_p \ll 1$. Then one would solve the Bloch equation at time t , starting with $B(\omega_{ab}; z, t - \tau)$ and $\Omega(z, t - \tau)$. It should be stressed that the material response at time t cannot be simply expressed in terms of the Bloch vector at $t - \tau$. Indeed, due to the infinite inhomogeneous bandwidth, the material gives rise to an instantaneous response. Let us formally solve the Bloch equation in the following way:

$$\begin{aligned} v(\omega_{ab}; z, t) &= v(\omega_{ab}; z, t - \tau)\cos(\Delta\tau) + u(\omega_{ab}; z, t - \tau)\sin(\Delta\tau) \\ &\quad - \int_0^\tau \Omega(z, t - \tau')w(\omega_{ab}; z, t - \tau')\cos(\Delta\tau')d\tau'. \end{aligned} \quad (3)$$

The first two terms on the right-hand side correspond to the free precession of the Bloch vector from $t - \tau$ to t . The last term reflects the coupling to the field during this time interval. Initially $w(\omega_{ab}; z, t_0) = -1$, since all the atoms sit in the ground state. As the pulse propagates through the sample, $w(\omega_{ab}; z, t) + 1$ departs from 0 over a spectral interval given by the pulse width Δ_p . However, according to Eq. (3), the driving field uniformly excites the atoms all over the inhomogeneous width, since the weight factor $w(\omega_{ab}; z, t_0)$ is initially close to -1 everywhere. Summing over an infinite inhomogeneous width clearly raises a numerical computation issue. An infinite width contribution also reflects an instantaneous response feature that we intend to express analytically, thus relaxing the computation problem. Substituting $v(\omega_{ab}; z, t)$ into the wave equation one obtains

$$\begin{aligned} \partial_z \Omega(z, t) &= -\frac{\alpha}{2\pi} \int d\omega_{ab} \int_0^\tau \Omega(z, t - \tau')\cos(\Delta\tau')d\tau' \\ &\quad + \frac{\alpha}{2\pi} \int d\omega_{ab} \int_0^\tau \Omega(z, t - \tau')[w(\omega_{ab}; z, t) \\ &\quad + 1]\cos(\Delta\tau')d\tau' - \frac{\alpha}{2\pi} \int d\omega_{ab} v_{\text{free}}(\omega_{ab}; z, t - \tau, t), \end{aligned} \quad (4)$$

where:

$$\begin{aligned} v_{\text{free}}(\omega_{ab}; z, t - \tau, t) &= v(\omega_{ab}; z, t - \tau)\cos(\Delta\tau) \\ &\quad + u(\omega_{ab}; z, t - \tau)\sin(\Delta\tau). \end{aligned} \quad (5)$$

The instantaneous response contribution has been isolated in the first term on the right-hand side. This easily reduces to $-(\alpha/2)\Omega(z, t)$. The second term, of order $-(\alpha/2)\Delta_p \tau \Omega(z, t)$, can be neglected since $\Delta_p \tau \ll 1$. Finally the wave equation solution reads as

$$\Omega(z, t) = \Omega(0, t)e^{-\alpha z/2} - \frac{\alpha}{2\pi} \int_0^z dz' e^{-\alpha(z-z')/2} \int d\omega_{ab} v_{\text{free}}(\omega_{ab}; z', t - \tau, t). \quad (6)$$

In the small area limit, the second term on the right-hand side can be neglected. The equation then reduces to the Bouguer law of absorption [17]. As a starting point for numerical computation, the equation conveniently expresses $\Omega(z, t)$ in terms of $\Omega(0, t)$ and of $B(\omega_{ab}; z, t - \tau)$. In order to get $B(\omega_{ab}; z, t)$ in terms of $B(\omega_{ab}; z, t - \tau)$ and $\Omega(z, t - \tau)$, one complements Eq. (3) with the integral solutions for $u(\omega_{ab}; z, t)$ and $w(\omega_{ab}; z, t)$:

$$u(\omega_{ab}; z, t) = u_{\text{free}}(\omega_{ab}; z, t - \tau, t) + \int_0^\tau \Omega(z, t - \tau') w(\omega_{ab}; z, t - \tau') \sin(\Delta\tau') d\tau',$$

$$w(\omega_{ab}; z, t) = w(\omega_{ab}; z, t - \tau) + \int_0^\tau \Omega(z, t - \tau') v(\omega_{ab}; z, t - \tau') d\tau', \quad (7)$$

where

$$u_{\text{free}}(\omega_{ab}; z, t - \tau, t) = u(\omega_{ab}; z, t - \tau) \cos(\Delta\tau) - v(\omega_{ab}; z, t - \tau) \sin(\Delta\tau). \quad (8)$$

According to Eq. (7), the second term on the right-hand side of Eq. (6) still apparently contains far-from-resonance contributions. Indeed, $u(\omega_{ab}; z, t)$ and $v(\omega_{ab}; z, t)$ are built from $v(\omega_{ab}; z, t)$ all over the infinite inhomogeneous width. To show the instantaneous response is actually contained in the first term, let us define the new variables:

$$U(\omega_{ab}; z, t) = u(\omega_{ab}; z, t) + \int_0^\infty \Omega(z, t - \tau') \sin(\Delta\tau') d\tau',$$

$$V(\omega_{ab}; z, t) = v(\omega_{ab}; z, t) - \int_0^\infty \Omega(z, t - \tau') \cos(\Delta\tau') d\tau'. \quad (9)$$

Those new variables vanish far from resonance with the driving field. Then one easily verifies that Eq. (6) is left unchanged if $u(\omega_{ab}; z, t - \tau)$ and $v(\omega_{ab}; z, t - \tau)$ are respectively replaced by $U(\omega_{ab}; z, t - \tau)$ and $V(\omega_{ab}; z, t - \tau)$.

3. PULSE DISTORSION AND AREA THEOREM

According to the McCall and Hahn theorem [3], the transmitted pulse area, A_{out} , can be expressed in terms of the incoming pulse, A_{in} , as

$$\tan(A_{\text{out}}/2) = e^{-\alpha L/2} \tan(A_{\text{in}}/2), \quad (10)$$

where the pulse area is defined as $A = \int \Omega(t) dt$. The corresponding variation of the transmission factor $A_{\text{out}}/A_{\text{in}}$ as a function of A_{in} is displayed in Fig. 1.

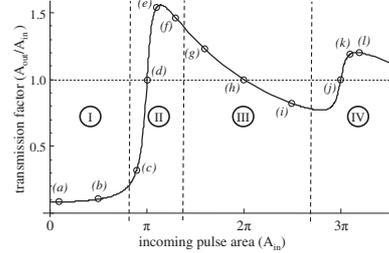


Fig. 1. Area theorem: pulse area transmission factor $A_{\text{out}}/A_{\text{in}}$ as a function of the incoming pulse area A_{in} . Labels (a) to (l) refer to the different input-area conditions considered in Fig. 2.

To explore the shape distortion of an incoming rectangular pulse, we numerically solve the MB equations along the lines exposed in Section 2. The results of this computation are presented in Fig. 2 for different pulse area values. The box labels help to locate the propagation regime in Fig. 1. The distortion can be understood in light of the area theorem and of energy conservation. Four different regions can be identified in Fig. 1. In region (I) nearly no light is emitted after the incoming pulse extinction. The pulse simply obeys the Bouguer law and is hardly distorted. In region (II), located around π area, the pulse stretches in order to comply with two contradictory prescriptions. On the one hand the energy absorption increases, since all the resonantly excited atoms are promoted to the upper level, at any depth within the sample. On the other hand the area transmission factor grows larger than unity. Region (III) is centered on the 2π area. The transmission factor is still close to unity, but less energy is absorbed since the resonantly excited atoms are returned to their ground state. In this region the outgoing pulse duration decreases, getting closer to that of the incoming pulse. In this region the pulse tends to the ex-

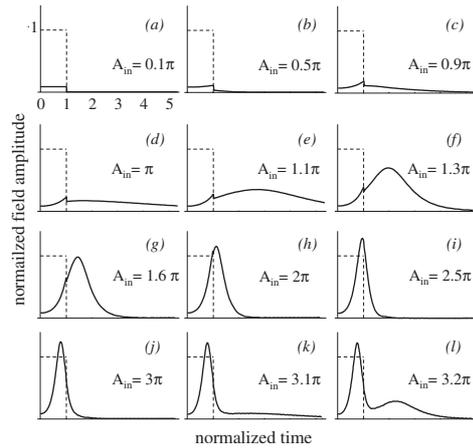


Fig. 2. Numerical solution of the MB equation. The incoming rectangular pulse (dotted line) propagates through an $\alpha L = 5$ sample. The temporal profile of the pulse at the output (solid line) is displayed for different values of the input area. Time and outgoing pulse amplitude are normalized to the duration and the amplitude of the incoming pulse, respectively. The box labels refer to the corresponding area values, as predicted by the McCall and Hahn theory in Fig. 1.

pected soliton hyperbolic secant shape. Finally the pulse area undergoes another increase in region (IV), around the 3π area. As in region (II), this area increase conflicts with the energy depletion by the resonantly excited atoms that are left in the upper level. This apparent contradiction is solved by the emergence of a stretched secondary component in the tail of the main pulse. However, the 3π pulse is less distorted than the π pulse by the increase of energy transfer to the atoms. Indeed, to excite the same number of atoms, a 3π pulse consumes a 9 times smaller fraction of the available energy than a π pulse.

The rapid growing of the long tails, in both the π and 3π regions, provides us with key features for experimental data analysis.

4. EXPERIMENTAL SETUP

The 0.5% at. Tm^{3+} :YAG crystal is cooled down to ≈ 2.2 K in a helium bath cryostat. The experiment is performed on the ${}^3\text{H}_4$ - ${}^3\text{H}_6$ transition at 793 nm. The sample length is $L=5$ mm. At the operating temperature the opacity is measured to be $\alpha L \approx 5$. The crystal sides are cut perpendicular to direction $[1, -1, 0]$, and the light beam is polarized along direction $[1, 1, 1]$. This way, three sites out of six interact with the driving field, and they do so with the same Rabi frequency.

The sample is excited by a monochromatic semiconductor laser (Fig. 3). We carefully control the spectrotemporal and spatial properties of the source. The laser linewidth is first reduced to less than 1 kHz by Pound-Drever-Hall locking to a high-finesse Fabry-Perot cavity. After a boost up through a tapered semiconductor amplifier, the laser beam is precisely temporally shaped by an acousto-optic modulator (AOM). The AOM is directly driven by a high-frequency arbitrary waveform generator (Tektronix AWG520) operating at 1 Gs/s, which guarantees precise amplitude and phase control. The beam is then spatially filtered by a 2 m long single-mode optical fiber.

The experimental conditions must be consistent with the plane-wave assumption of the theory. First we make the laser beam depth of field (DF) $\gg L$. The DF, defined as twice the Rayleigh range, is given by $2\pi n w_0^2/\lambda$, where $n=1.82$ stands for the YAG index of refraction and where the waist has been adjusted to $w_0 \approx 25$ μm . Therefore $\text{DF} \approx 9$ mm, which is significantly larger than L . In order to put the beam waist at the crystal center, we position the focusing lens at maximum Rabi frequency, as probed by an optical nutation signal. Then we use a pinhole to

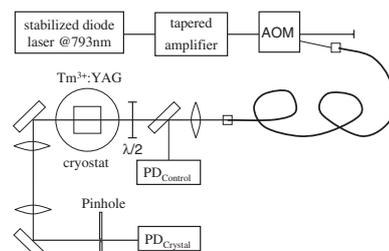


Fig. 3. Experimental setup.

select the signal emerging from the center of the illuminated spot. The sample is imaged on the 50 μm pinhole through a telescope with $4\times$ magnification. This corresponds to an 8% peak-to-peak excitation intensity variation over the detected area. The signal is detected on an avalanche photodiode.

The input intensity is monitored by photodetector $\text{PD}_{\text{control}}$ (Fig. 3). We carefully calibrate the detection in Rabi frequency units. This is a critical step of our experiment. Optical nutation offers the best access to Rabi frequency [14]. However this measurement technique is valid only in the low absorption limit. Because of the large sample opacity at resonance, we have to detune the laser about 20 GHz from the center of the absorption band to perform the calibration. At this spectral position the opacity is reduced by a factor of about 10. The transmitted intensity is detected on $\text{PD}_{\text{crystal}}$. We calibrate this detector with the raising edge of the rectangular pulse. Indeed, immediately after switch-on, the transmitted intensity simply reads as $I_0 \exp(-\alpha L)$, where I_0 represents the input pulse intensity that is measured on $\text{PD}_{\text{control}}$.

5. RESULTS AND DISCUSSION

We experimentally study the propagation of rectangular-shaped pulses. The pulse duration is adjusted to 7 μs , which is significantly smaller than the atomic coherence lifetime of ≈ 50 μs .

The input area ranges from 0.5π to 3.4π . The observed temporal profiles are displayed in Fig. 4. They exhibit the features predicted in Fig. 2. As expected, the pulse is strongly stretched around the input π area, since the area has to be conserved in spite of large resonant absorption. Then, as the input area is increased, the pulse shrinks back, which is consistent with reduced absorption. Finally, around 3π , the pulse spreads again as reso-

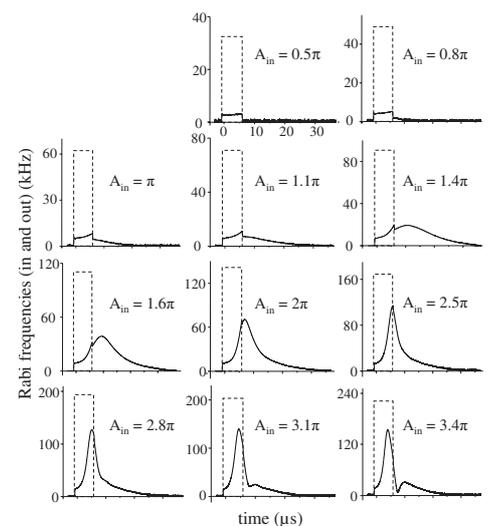


Fig. 4. Experimental profile of the transmitted pulse amplitude (solid line). Input area (A_{in}) ranges from 0.5π to 3.4π . Input pulses (dotted line) are rectangular with 7 μs duration.

nant absorption increases, growing a side lobe to simultaneously satisfy area conservation and energy drop.

The expected output area evolution is also observed. However, agreement with theory is only qualitative. As seen in Fig. 5 the ratio of the output area to the input area lags behind the predicted value, especially in the region of π and 3π incoming pulses. The theoretical profile in Fig. 5 accounts for the finite dipole lifetime that has been set to $50 \mu\text{s}$. As compared with Fig. 1, the finite coherence lifetime slightly reduces the computed transmission factor, especially in the π and 3π regions where the propagating pulse is strongly stretched. This reduction is not sufficient to fit the experiment. The value of the dipole lifetime may be questioned. With a lifetime of only $10 \mu\text{s}$, the theoretical prediction gets closer to the experimental data. However the rising edge of the curve is shifted to higher area values, in agreement with previous works [18] but in contradiction with the experimental results.

A possible fault of the setup is the absence of antireflection coating on the crystal. As a consequence, a reflected field counterpropagates through the excited medium with an amplitude reflection coefficient as large as 30%, given the high index of refraction of YAG.

One has also to consider the failure of the plane-wave approximation when the pulse area is close to π . The plane-wave assumption relies on the large size of the depth of field with respect to the sample length and on the selection of the central part of the beam with the pinhole. However, the portions of the Gaussian beam profile corresponding to areas smaller than π are absorbed more efficiently than the central part of the beam [13]. Such a peeling of the outer portions of the beam tends to reduce the spot size and to move the waist to the output of the sample. The effective depth of field, varying as the square of the waist, gets rapidly smaller than the sample length, and since the waist migrates to the output of the sample, the imaging conditions are no longer satisfied at the pinhole position. To be more specific, let us assume that the waist moves to the end of the sample and that its size is changed from w_0 to w'_0 . Let the intensity at the center of the beam profile remain unchanged. Then, provided the beam remains Gaussian, the detected intensity is reduced by the factor

$$1 + \left(\frac{L\lambda}{2\pi w_0'^2} \right)^2.$$

Changing the waist size from $w_0=25 \mu\text{m}$ to $w'_0=14 \mu\text{m}$ would entail a reduction of the detected area by a factor of 2. The waist position not only moves to the output of the crystal but also undergoes strong temporal variations. This is illustrated in Fig. 6 where we simulate the time evolution of the field radial distribution. The rectangular pulse area is set equal to 1.1π along the beam axis. We neglect the effect of diffraction. Each ray propagates at fixed distance r from the beam axis, with a well defined initial area $1.1\pi e^{-r^2/w_1^2}$. According to this model, the output spatial distribution of intensity quite faithfully replicates the input distribution, *within the incoming pulse duration*, even in the π area region. The transmitted beam distortion occurs during the delayed response of the crystal and grows dramatically as time elapses. We agree

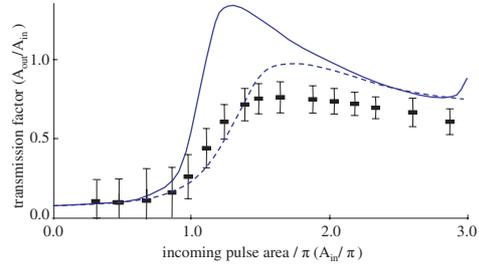


Fig. 5. (Color online) Pulse area transmission factor $A_{\text{out}}/A_{\text{in}}$ as a function of the incoming pulse area A_{in} . Input pulses are rectangular with $7 \mu\text{s}$ duration. Theory accounts for a finite coherence lifetime of $50 \mu\text{s}$ (solid line) or $10 \mu\text{s}$ (dashed line).

this model gives nothing but a rough picture of the beam distortion. Only the 3D MB solution would correctly account for the resulting focusing and diffraction effects, but this by far exceeds the scope of the paper.

The discrepancy with theory probably results from both a coherence decay rate underestimation and violation of the large depth-of-field approximation. Finally the excess of absorption reminds us of previously reported data [15], although agreement with theory has been improved in our experiment.

6. CONCLUSION

The propagation of rectangular pulses has been investigated in monochromatic plane-wave conditions. In order to consistently account for the very broad inhomogeneous bandwidth of the absorption line, the standard MB theory has been adjusted so that the instantaneous radiative response has been described analytically. Experimental data qualitatively agree with theory. However a significant quantitative discrepancy subsists, especially in the most interesting π pulse region, where the resonantly excited Bloch vector should undergo a π rotation at any depth inside the sample [19].

In the context of quantum optical storage, the need for efficient preparation of a large optical density sample has been stressed recently [20,21]. The preparation step can

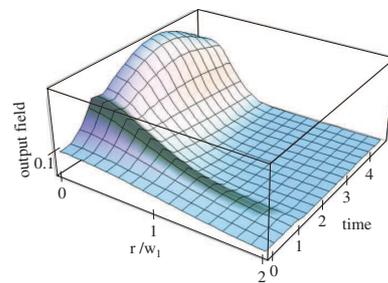


Fig. 6. (Color online) Time evolution of the radial field distribution at the crystal output. The incoming rectangular pulse with unit time duration exhibits a radial Gaussian profile with waist w_1 . The field area is set equal to 1.1π on the beam axis. The pulse reaches the crystal at time 0. Within the duration of the incoming pulse, the radial profile of the field is not strongly distorted by propagation. On the contrary, the beam radius shrinks dramatically during the delayed response of the atoms.

require sophisticated excitation procedures [22–24]. In the present paper we have concentrated on single rectangular pulse propagation as a preliminary step to the investigation of more complex pulse sequences [22]. The π pulse case deserves special attention, since all the resonantly excited ions should undergo π pulse excitation, wherever they sit in the sample depth. The unsatisfactory agreement with theory in the π pulse case should stimulate further coherent propagation investigation.

REFERENCES

1. R. H. Dicke, "Coherence in spontaneous radiation processes," *Phys. Rev.* **93**, 99–110 (1954).
2. N. E. Rehler and J. E. Eberly, "Superradiance," *Phys. Rev. A* **3**, 1735–1751 (1971).
3. S. L. McCall and E. L. Hahn, "Self-induced transparency by pulsed coherent light," *Phys. Rev. Lett.* **18**, 908–911 (1967).
4. R. E. Slusher and H. M. Gibbs, "Self-induced transparency in atomic rubidium," *Phys. Rev. A* **5**, 1634–1659 (1972).
5. R. E. Slusher, H. M. Gibbs, "Sharp-line self-induced transparency," *Phys. Rev. A* **6** 2326–2334 (1972).
6. S. L. McCall and E. L. Hahn, "Self-induced transparency," *Phys. Rev.* **183**, 457–485 (1969).
7. K.-J. Boller, A. Imamoglu, and S. E. Harris, "Observation of electromagnetically induced transparency," *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2593–2596 (1991).
8. M. J. Konopnicki and J. E. Eberly, "Simultaneous propagation of short different-wavelength optical pulses," *Phys. Rev. A* **24**, 2567–2583 (1981).
9. S. E. Harris, "Electromagnetically induced transparency with matched pulses," *Phys. Rev. Lett.* **70**, 552–555 (1993).
10. V. V. Kozlov and J. E. Eberly, "Ultrashort pulses in phaseonium: the interplay between SIT and EIT," *Opt. Commun.* **179**, 85–96 (2000).
11. A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, and P. R. Hemmer, "Observation of ultraslow and stored light pulses in a solid," *Phys. Rev. Lett.* **88**, 023602 (2001).
12. F. Schlottau, M. Picket-May, and K. Wagner, "Modelling of femtosecond pulse interaction within homogeneously broadened media using an iterative predictor corrector FDTD method," *Opt. Express* **12**, 182–194 (2005).
13. R. E. Slusher, "Self-induced transparency," in *Progress in Optics*, E. Wolf, ed. (North Holland, 1974), p. 55.
14. Y. Sun, G. M. Wang, R. L. Cone, R. W. Equall, and M. J. M. Leask, "Symmetry considerations regarding light propagation and light polarization for coherent interactions with ions in crystals," *Phys. Rev. B* **62**, 15443–15451 (2000).
15. G. Zumofen, F. R. Graf, A. Renn, and U. P. Wild, "Pulse propagation in rare-earth ion doped crystals," *J. Lumin.* **83–84**, 379–384 (1999).
16. C. Greiner, B. Boggs, and T. W. Mossberg, "Superradiant emission dynamics of an optically thin material sample in a short-decay-time optical cavity," *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3793–3796 (2000).
17. Pierre Bouguer, *Essai d'optique sur la gradation de la lumière*, print. by Claude Jombert, In-12, 164 pages (1729), Paris.
18. W. Miklaszewski and J. Fiutak, "The effect of the homogeneous broadening on the propagation of the light pulses," *Z. Phys. B* **93**, 491–499 (1994).
19. J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, C. Simon, and T. Chanelière, "Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol," *Phys. Rev. A* **79**, 053851 (2009).
20. Hugues de Riedmatten, Mikael Afzelius, Matthias U. Staudt, Christoph Simon, and Nicolas Gisin, "A solid-state light-matter interface at the single-photon level," *Nature* **456**, 773–777 (2008).
21. Mikael Afzelius, Christoph Simon, Hugues de Riedmatten, and Nicolas Gisin, "Multimode quantum memory based on atomic frequency combs" *Phys. Rev. A* **79**, 052329 (2009).
22. G. J. Pryde, M. J. Sellars, and N. B. Manson, "Solid state coherent transient measurements using hard optical pulses," *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1152–1155 (2000).
23. F. de Seze, V. Lavielle, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët, "Chirped pulse generation of a narrow absorption line in a Tm³⁺:YAG crystal," *Opt. Commun.* **223**, 321–330 (2003).
24. F. de Seze, F. Dahes, V. Crozatier, F. Bretenaker, and J.-L. Le Gouët, "Coherent driving of Tm:YAG ions using a complex hyperbolic secant optical field," *Eur. Phys. J. D* **33**, 343–355 (2005).

Annexe C

Article sur $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ envisagé comme matériau mémoire

Ci-après est présenté l'article [37] tel qu'il a été publié dans *Physical Review B*.

PHYSICAL REVIEW B 77, 245127 (2008)

$\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ investigated for a quantum light storage application

T. Chanelière, J. Ruggiero, and J.-L. Le Gouët

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS-UPR 3321, Université Paris-Sud, Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

W. Tittel

Institute for Quantum Information Science, University of Calgary, 2500 University Drive NW, Calgary, Alberta, Canada T2N 1N4

J.-H. Mun, A. Jouini, and A. Yoshikawa

Division of Physical Process Design, Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials (IMRAM), Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, 980-8577, Japan

G. Boulon

Physical Chemistry of Luminescent Materials, University Claude Bernard Lyon 1, CNRS UMR 5620, 69622 Villeurbanne Cedex, France

Y. Le Du, Ph. Goldner, F. Beaudoux, J. Vincent, E. Antic-Fidancev, and O. Guillot-Noël

Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris, CNRS-UMR 7574, Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris (ENSCP), 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05, France

(Received 13 March 2008; published 20 June 2008)

In this paper, we investigate a new medium for quantum light storage in crystals. Indeed, $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ exhibits all the features that are currently considered crucial for a storage protocol. First, optical measurements confirm our crystal-field analysis. Then, we explain how to tailor a three-level Λ system and ultimately measure the Stark coefficient in this material. To our knowledge, these properties have not been investigated at the same time in a thulium based crystal, for which both the operating wavelength and an adjustable storage bandwidth are significant assets that other rare-earth ions lack.

DOI: 10.1103/PhysRevB.77.245127

PACS number(s): 03.67.-a, 32.60.+i, 32.70.Cs, 32.80.Qk

I. INTRODUCTION

The design of a solid-state quantum light memory has been recently considered in rare-earth-ion-doped crystals. These materials historically first aroused interest because of their population lifetime, which is still the basis in laser applications. Later, coherent effects were also widely studied for classical light storage and more generally for optical data processing benefiting from the long lifetime of the atomic coherences in these crystals. Now quantum light storage raises different problems, and this is why it is useful to reconsider the catalog of rare-earth-ion-doped crystals from a different point of view.

The ideal properties of a quantum memory material strongly depend on the storage protocol used. Nevertheless, they usually rely on a few common characteristics that we can briefly review. The most promising protocols can be split into two categories. First, the electromagnetically induced transparency (EIT) based ones, where the state of light is directly converted into Raman coherences.¹ Guided by the stopped-light experiment—proposed and first verified for atomic gases—this category of quantum protocols should be easily applied to rare-earth-doped crystals as soon as a relatively long lifetime of the Raman coherence is observed. Classical light storage has been experimentally demonstrated for praseodymium in yttrium orthosilicate.² Second, rephasing protocols have emerged and are now considered as very promising. They are indeed in the direct lineage of the coherent transient phenomena that have been studied for decades.³ The rephasing process cannot be solely based on

the usual photon echo techniques: the population inversion intrinsically associated with the coherence rephasing would spoil the memory retrieval because of the detrimental fluorescence. A gentle way to rephase the coherences is to prepare the medium absorption profile by controlling reversible inhomogeneous broadening.⁴⁻⁶ The broadening reversal generates an echo, which can be the exact copy of the incoming signal. The frequency detuning is usually controlled by applying an external electric field and thus relies on the linear Stark effect. This was recently investigated experimentally using different configurations.^{5,7,8} To change the direction of echo retrieval, coherent light pulses may need to be applied on an auxiliary transition, which also requires long-lived Raman coherences, similar to the EIT based approach to quantum state storage.

Taking into account these two categories of quantum memory protocols, two important features of a promising material candidate for quantum storage are the ability to optically control the ground-state coherence (Raman transition) and the presence of a linear Stark effect. Our goal here is to show that $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ can fulfill these two criteria. We would like to emphasize that the simple energy-level structure of Tm^{3+} ions—somewhat unusual among the rare-earth ions—is advantageous. Because of the $I=1/2$ nuclear spin, there is no hyperfine structure in the absence of an external magnetic field. This seems to restrict Tm^{3+} to a purely optical two-level system or at least to a certain level of poverty for any ground-state coherence addressing. Applying an external magnetic field removes the nuclear-spin degeneracy and splits the electronic levels. A three-level Λ system with

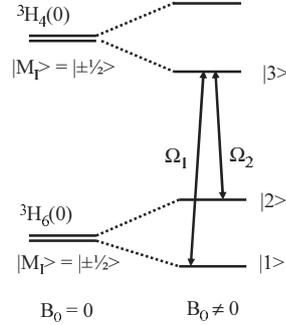


FIG. 1. Three-level Λ system in the case of Tm^{3+} ions between three hyperfine levels of the first crystal-field states of the ${}^3\text{H}_6$ and ${}^3\text{H}_4$ multiplets. The external magnetic field B_0 lifts the nuclear-spin degeneracy and can induce different M_I mixing in the ground and excited states.

Tm^{3+} ions (Fig. 1) involves the two hyperfine levels of the ground state ${}^3\text{H}_6(0)$ and one hyperfine level of the excited state ${}^3\text{H}_4(0)$.

Even when an external magnetic field lifts the degeneracies of the ground and excited states, a nuclear Zeeman based Λ system cannot be optically controlled because nuclear-spin flipping is, in principle, optically forbidden. However, for Tm^{3+} -doped yttrium aluminum garnet (YAG), we recently showed, both theoretically⁹ and experimentally,^{10,11} that this selection rule can be overcome. Under particular orientations of the external magnetic field, the coupling of the electronic Zeeman and hyperfine interactions relaxes the selection rule and makes possible the optical addressing. In this paper, we make use of this property to propose the building of an efficient three-level system in $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$. The yttrium oxide host is not simply a substitute for $\text{Tm}:\text{YAG}$. Indeed, the D_2 site symmetry of thulium in YAG forbids any permanent electric dipole. On the contrary, the C_2 site symmetry in yttrium oxide allows a linear Stark effect, whose coefficient is measured in this work.

The convenience of the operating wavelength (795 nm) for Tm^{3+} is particularly interesting in comparison with that for Pr^{3+} (606 nm), even though the latter exhibits a Λ system based on the hyperfine structure without any external magnetic field. Our system also benefits from the possibility of controlling the ground-state splitting by adjusting the magnetic-field intensity. Indeed, this should allow us to increase at will the bandwidth of the memory. Finally, it is worth noting that Tm^{3+} also has a ${}^3\text{F}_4$ shelving state. Far-off-resonance population transfer is a necessary preliminary step common to many storage protocols. The latter point enforces the interest in thulium-doped crystals for quantum memory application.

Our paper is organized as follows: We first give the general features of $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ and define the different site orientations in the crystallographic frame. We then determine theoretically the proper orientations of the magnetic field to efficiently excite the ground-state coherences. We finally show experimentally the static electric-field sensitivity and measure the linear Stark coefficient. To our knowledge, these

two crucial properties have never been considered at the same time in a thulium-doped crystal.

II. GENERAL FEATURES AND CRYSTAL-FIELD ANALYSIS

The trivalent thulium has a 12 electron configuration and is thus a non-Kramers ion.¹² The transition we are looking at, from the ${}^3\text{H}_6$ to the ${}^3\text{H}_4$ levels, lies in the near infrared (795 nm) accessible with laser diodes and is then particularly convenient. In between these levels, ${}^3\text{H}_4$ relaxes toward ${}^3\text{H}_5$ (submillisecond time scale), which rapidly decays to the ${}^3\text{H}_4$ metastable state (10 ms lifetime typically).

Yttrium oxide Y_2O_3 is a cubic crystal with 16 f.u./elementary cell. Among the 32 yttrium cations, 8 occupy a C_{3i} point site symmetry and 24 a C_2 one. The trivalent thulium substitutes for yttrium in both sites. We shall consider only the C_2 sites which can be observed optically. The local crystal-field axes (x, y, z) of the C_2 sites are parallel to the crystallographic frame $[1\ 0\ 0]$, $[0\ 1\ 0]$, and $[0\ 0\ 1]$ axes. This will radically simplify the crystal-field analysis and the physical interpretation of the experiment under static electric and magnetic fields.

The lack of hyperfine structure in the absence of an external magnetic field is caused by the $I=1/2$ nuclear spin. The ${}^3\text{H}_6(0)$ to ${}^3\text{H}_4(0)$ transition between the two lower states of the multiplets is then a pure two-level system for coherent transient applications. The ${}^3\text{H}_4$ metastable state can be used for storing population in hole-burning experiments.

For Tm^{3+} ions in a low site symmetry C_2 , the spin Hamiltonian H_{SH} is given in a J multiplet by

$$H_{\text{SH}} = \mathbf{B} \cdot (-\beta^2 g_J^2 \mathbf{\Lambda}) \cdot \mathbf{B} + \mathbf{B} \cdot (-g_n \beta_n \mathbf{I} - 2g_J \beta \mathbf{\Lambda}) \cdot \mathbf{I}, \quad (1)$$

where β and β_n are the electronic and nuclear Bohr magnetons, g_J is the g factor associated with the J multiplet, and g_n is the nuclear g factor of Tm^{3+} . \mathbf{I} is the nuclear-spin operator. $\mathbf{I} \cdot \mathbf{I}$ is the identity operator. The $\mathbf{\Lambda}$ tensor in H_{SH} is determined by second-order perturbation theory and is calculated by taking into account all the crystal-field levels of a particular J multiplet,

$$\Lambda_{\alpha\beta} = \sum_{n \neq 0} A_J \frac{\langle 0 | J_\alpha | n \rangle \langle n | J_\beta | 0 \rangle}{E_n - E_0}, \quad (2)$$

where α and β stand for x , y , or z . A_J is the hyperfine constant for the J multiplet. The index 0 denotes the first crystal-field level [${}^3\text{H}_6(0)$ or ${}^3\text{H}_4(0)$] and n the other crystal-field levels of a $2S+1L_J$ multiplet. E_n is the energy of the crystal-field level n . In a C_2 symmetry, $\mathbf{\Lambda}$ in the local crystal-field frame (x, y, z) takes the following form:

$$\mathbf{\Lambda} = \begin{pmatrix} \Lambda_{xx} & \Lambda_{xy} & 0 \\ \Lambda_{xy} & \Lambda_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \Lambda_{zz} \end{pmatrix}. \quad (3)$$

Equation (1) clearly shows that the coupling of the electronic Zeeman with the hyperfine interaction ($2g_J \beta \mathbf{\Lambda}$) is responsible for the hyperfine splittings. Because the hyperfine term

$\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ INVESTIGATED FOR A QUANTUM...

PHYSICAL REVIEW B 77, 245127 (2008)

$\Lambda_{\alpha\beta}$ is strongly dependent on the crystal-field splitting of the J multiplet [Eq. (2)], we obtain different hyperfine splittings for the ground state ${}^3\text{H}_6(0)$ and the excited state ${}^3\text{H}_4(0)$. In Eq. (1), the first term on the right-hand side $[\mathbf{B}\cdot(-\beta^2 g_J^2 \mathbf{A})\cdot\mathbf{B}]$ leads to a global shift of all the hyperfine transitions in a given J multiplet independently of the nuclear-spin projection M_I . From now on, this term will not be considered and we shall work with this simplified spin-Hamiltonian,

$$H'_{SH} = \mathbf{B} \cdot \boldsymbol{\gamma} \cdot \mathbf{I}, \quad (4)$$

where $\boldsymbol{\gamma}$ is a pseudonuclear tensor given by

$$\boldsymbol{\gamma} = -g_n \beta_n \mathbf{Id} - 2g_J \beta \mathbf{A}. \quad (5)$$

As we already demonstrated previously,⁹ for a given magnetic-field orientation, these different hyperfine splittings lead to different M_I mixings at the ${}^3\text{H}_6(0)$ and ${}^3\text{H}_4(0)$ levels: this relaxes the selection rule on the nuclear-spin projection. An efficient three-level Λ system can thus be obtained and the branching ratio R between the two optical transitions defined in Fig. 3 is calculated from the nuclear part of the wave functions as

$$R = \frac{|\langle 2|3\rangle|^2}{|\langle 1|3\rangle|^2}. \quad (6)$$

Because the whole wave function can be split into an electronic and a nuclear part,⁹ the branching ratio R then requires the computation of the wave functions. This is done through the diagonalization of the spin Hamiltonian whose parameters are computed from crystal-field calculations. The full Hamiltonian H_F is given by

$$H_F = H_{FI} + H_{CF}, \quad (7)$$

where H_{FI} is the free-ion Hamiltonian and H_{CF} is the crystal-field one. The free-ion interactions are written according to the formalism of Carnall *et al.*,¹³

$$H_{FI} = H_0 + \sum_{k=1,2,3} E^k e_k + \zeta_{4f} A_{SO} + \alpha L(L+1) + \beta G(G_2) + \gamma G(R_7) + \sum_{i=2,3,4,6,7,8} t_i T^i. \quad (8)$$

In this expression, H_0 is the spherical symmetric one-electron part of the Hamiltonian, E^k are the Racah parameters, and ζ_{4f} is the spin-orbit coupling constant. Here e_k and A_{SO} represent the angular parts of the electrostatic repulsion and the spin-orbit coupling, respectively. The α , β , and γ parameters are associated with the two-body interactions and the T^i (Judd parameters) with the three-body interactions. $G(G_2)$ and $G(R_7)$ are the eigenvalues of Casimir's operators for the groups G_2 and R_7 .¹⁴ The Judd parameters are vanishing for the f^2 and f^{12} configurations. Other interactions such as spin-spin and spin-other orbit interactions operating through the M^k and P^k parameters are not included in the calculations. Following Wybourne's formalism,¹⁴ the crystal-field Hamiltonian is expressed as a sum of products of crystal-field parameters and spherical harmonics Y_{kq} ,

TABLE I. Free-ion and crystal-field parameters for Tm^{3+} ions in Y_2O_3 single crystals (in cm^{-1}) and experimental and calculated energy levels (in cm^{-1}) corresponding to the two ${}^3\text{H}_6$ and ${}^3\text{H}_4$ multiplets of interest in this work. The rms standard deviation σ is indicated.

Parameter (cm^{-1})	Multiplet $2S+1L_J$	Energy levels (cm^{-1})		
		Expt.	Calc.	
E^0	${}^3\text{H}_6$	0	0	
E^1		31	35.1	
E^2		89	94.2	
E^3		219	216.1	
α		230	230.1	
β		340	354.1	
γ		382	393	
ζ_{4f}		436	434.1	
B_0^2		488	479.6	
B_4^0		-1 048.5	647.6	
B_0^6	444.6	692	684.1	
B_2^2	-516.9	788	783.8	
B_4^2	-1073.5	797	790.6	
B_4^4	697			
B_2^6	12.5			
B_4^6	460	${}^3\text{H}_4$	12 556	12 532.2
B_6^6	66.2		12 634	12 630.9
S_2^4	439		12 697	12 676.1
S_4^4	-594		12 813	12 795.5
S_2^6	-161		12 842	12 843.3
S_4^6	-172		12 872	12 864.2
S_6^6	-80			12 918.8
			13 017	13 050.4
σ	18.6		13 048	13 062.5

$$H_{CF} = \sum_{k=2}^{4,6} \sum_{q=0}^k \{B_q^k [C_q^{(k)} + (-1)^q C_{-q}^{(k)}] + iS_q^k [C_q^{(k)} - (-1)^q C_{-q}^{(k)}]\}, \quad (9)$$

with

$$C_q^{(k)} = \sqrt{\frac{4\pi}{2k+1}} Y_{kq}. \quad (10)$$

The number of nonzero crystal-field parameters B_q^k and S_q^k , real and imaginary parts, depends on the site symmetry of the lanthanide ion in the structure.

The energy levels, determined by Leavitt *et al.*¹² from absorption and emission measurements, are used to calculate the parameters of the free-ion and crystal-field Hamiltonians. For the free-ion Hamiltonian, eight parameters were varied, i.e., E^0 , E^1 , E^2 , and E^3 Racah parameters; α , β , and γ Trees parameters; and ζ_{4f} . The C_2 crystal-field parameters involve nine nonzero real B_q^k crystal-field parameters, namely, B_0^2 , B_4^0 , B_0^6 , B_2^2 , B_2^4 , B_4^2 , B_4^4 , B_2^6 , and B_6^6 , and five nonzero real S_q^k crystal-field parameters, namely, S_2^4 , S_4^4 , S_2^6 , S_4^6 , and S_6^6 . The

TABLE II. Spin-Hamiltonian parameters of the first crystal-field states of the ${}^3\text{H}_6$ and ${}^3\text{H}_4$ multiplets.

Parameter	Crystal-field level	
	${}^3\text{H}_6(0)$	${}^3\text{H}_4(0)$
gJ	1.16	0.95
A_J (MHz)	-470.3	-678.3
Λ_{xx}	-2.5×10^{-3}	-1.2×10^{-3}
Λ_{yy}	-2.7×10^{-4}	-2.3×10^{-4}
Λ_{zz}	-9.7×10^{-3}	-1.8×10^{-3}
Λ_{xy}	-6.6×10^{-4}	-1.4×10^{-4}
γ_{xx} (kHz/G)	8.57	3.51
γ_{yy} (kHz/G)	1.24	0.96
γ_{zz} (kHz/G)	32.12	5.22
γ_{xy} (kHz/G)	2.16	0.37

simulation of the energy-level scheme is performed on 59 experimental levels among the 91 possible of the $4f^{12}$ configuration. With a starting set of phenomenological free-ion and crystal-field parameters taken from the work of Leavitt *et al.*,¹² the rms standard deviation σ , taken as the figure of merit for the simulation, decreases to a rather good final value of 18.6 cm^{-1} . Table I gathers the free-ion and crystal-field parameters for Tm^{3+} ions in Y_2O_3 single crystals and the experimental and calculated energy levels of the ${}^3\text{H}_6$ and ${}^3\text{H}_4$ multiplets. The rms standard deviation is given for the 59 experimental levels. The full Hamiltonian (H_F) leaves each electronic level as a nondegenerate singlet due to the low point site symmetry of Tm^{3+} ions in the Y_2O_3 host.

From the crystal-field calculations, the spin-Hamiltonian parameters were calculated using Eqs. (2) and (5) and are gathered in Table II for the ${}^3\text{H}_6(0)$ and ${}^3\text{H}_4(0)$ states. Because the off-diagonal term γ_{xy} is different between the ${}^3\text{H}_6(0)$ and ${}^3\text{H}_4(0)$ states, the principal axes of the γ tensors do not have the same orientation in the ground and excited states. This will be particularly important in Sec. III, where we discuss the magnetic nonequivalency of the C_2 sites with regard to the external magnetic-field orientation.

From the spin-Hamiltonian parameters, we calculated R from Eq. (6). In the local crystal-field frame (x, y, z), the maximum value of $R=0.29$ is reached for an orientation of the external magnetic field of $\theta=87.3^\circ$ or 92.7° and $\phi=101.5^\circ$ in spherical coordinate with θ as the angle between the magnetic field and the local z axis and ϕ as the angle in the local xy plane. We shall see in Sec. III that if we take into account other optimization criteria than the simple maximization of R , i.e., the least number of magnetically nonequivalent sites and the orientation of the electric dipole moment of the transition, then the optimal (θ, ϕ) orientation will differ from the previously calculated one.

The orientation of the electric dipole moment of the ${}^3\text{H}_6(0) \rightarrow {}^3\text{H}_4(0)$ transition—as well as the one of the permanent dipole in the ground ${}^3\text{H}_6(0)$ and excited ${}^3\text{H}_4(0)$ states—can be retrieved from the electronic wave functions obtained from the diagonalization of H_F . Due to the C_2 symmetry, the only non-null B_q^k and S_q^k crystal-field parameters correspond to even k and q values. This implies that only two different

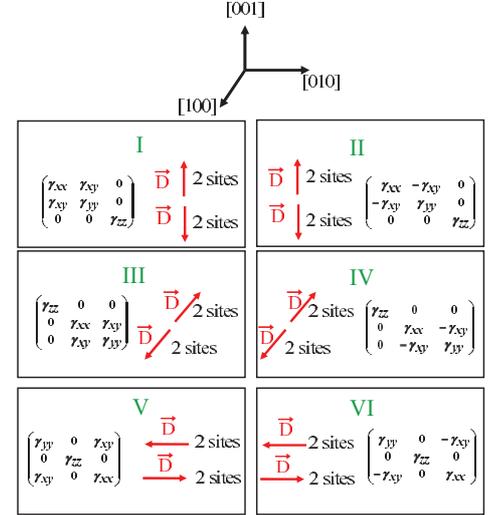


FIG. 2. (Color online) Representation of the six (I–VI) different magnetic nonequivalent classes in Y_2O_3 . [100], [010], and [001] are the crystallographic directions. Associated with each class is the matrix representation of the pseudonuclear tensor γ . We also display the electric dipole moment \vec{D} direction for all sites in each class. For example, classes I and II are magnetically nonequivalent for a general orientation of the external magnetic field. For class I, two of the four sites have a dipole moment \vec{D} along the positive [001] direction and the other two along the negative [001] direction.

electronic wave functions of the type $\sum_{M_J} c_{M_J} |2S+1L_J, 2M_J\rangle$ or $\sum_{M_J} c_{M_J} |2S+1L_J, 2M_J+1\rangle$ corresponding to two different irreducible representations can be obtained. The crystal-field calculations give the same type of wave functions for the ${}^3\text{H}_6(0)$ and ${}^3\text{H}_4(0)$ states of the form $\sum_{M_J} c_{M_J} |2S+1L_J, 2M_J\rangle$. Using the fact that the \hat{x} , \hat{y} , and \hat{z} electric dipole operators transform like the J_x , J_y , and J_z operators, respectively, and knowing that the only operator which does not change the type of electronic wave function is J_z , we conclude that the electric dipole moment of the ${}^3\text{H}_6(0) \rightarrow {}^3\text{H}_4(0)$ lies along the local z axis of the crystal-field frame. Because we are also interested in the effect of a static electric field (Stark effect), we note that the preceding argument also implies that the orientation of the permanent dipole in the ground and excited states will be carried by the local z axis.

The 24 sites of C_2 symmetry in the Y_2O_3 unit cell transform into one another according to the symmetry operations of the host. This gives rise to different orientations of the local crystal-field frame leading to magnetic and electric nonequivalencies as a function of the orientation of the external magnetic and electric fields, respectively.

Now, for a general orientation of the external magnetic field, the 24 possible sites are equally distributed in six magnetically nonequivalent classes labeled I–VI with four sites per class. In Fig. 2, we have depicted the latter six classes together with their corresponding electric dipole moment orientations for the ${}^3\text{H}_6(0) \rightarrow {}^3\text{H}_4(0)$ transition. Classes I and II have their electric dipole moments oriented along the [001] direction, those of classes III and IV along the [100] direc-

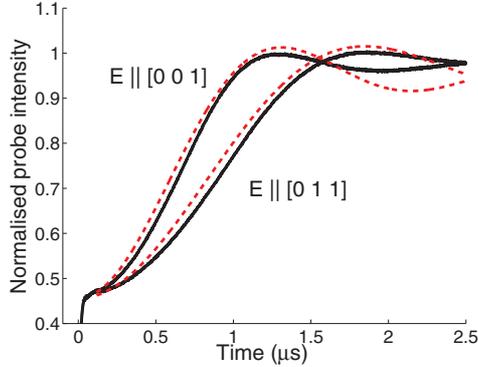


FIG. 3. (Color online) Optical nutation for two different orientations of the polarization: [001] and [011]. The extra damping of the Bessel-type oscillation could be explained by a short dephasing time for this specific temperature (around 4 μs at 3 K—see Sec. V for details).

tion, and those of classes V and VI along the [010] direction.

A simple way to check the orientation of the electric transition dipole is to perform an optical nutation experiment. This is not only a robust way to measure the absolute value of the Rabi frequency but, indeed, when multiple sites are present, it also allows us to distinguish and optically select the different dipole orientations. These nutation signals for various field polarizations are then strongly related to the crystal symmetry¹⁵ as we shall show experimentally.

Our sample is a 0.15% doped $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ crystal made by micropulling down method.¹⁶ For the growth, we use a rhenium crucible (46 mm in height and 36 mm in diameter) and the assembly was placed in hot zirconia ceramic. A 2 mm distance is kept between crucible and ceramic to prevent reaction. The crucible was heated inductively at a frequency of 20 kHz. The starting materials were prepared from high-purity commercial powders of Y_2O_3 (>99.99%) and Tm_2O_3 (99.99%). A single-crystal rod was used as a seed. The growth atmosphere is a mixture of Ar+3% H_2 . The crystal length in the propagation direction is around 4 mm. It is

oriented and cut along the crystallographic axes [100], [010], and [001]. The three axes being completely equivalent, we define the propagation axis as [100]. Then the polarization of the field is in the plane ([010], [001]). The sample is placed in liquid helium cryostat and cooled down to a few Kelvins. The peak absorption wavelength of the $^3\text{H}_6(0)$ to $^3\text{H}_4(0)$ transition is 796.514 nm with an inhomogeneous linewidth of 6 GHz. The absorption coefficient is around 2 cm^{-1} and the sample features optical coherence times of 4 μs at 3 K and 9 μs at 1.2 K, in good agreement with what was previously reported by Sun¹⁷ (see Sec. V).

To confirm the sites orientation, we then performed an optical nutation experiment. Our measurements are in good agreement with the predicted orientation of the dipoles (see Fig. 2). For illustration, we plot in Fig. 3 two specific signals for a field polarization parallel to [001] and [011] with the laser propagating along [100].

In the first case, we address the sites with \vec{D} parallel to [001] (sites of classes I and II in Fig. 2, these classes being equivalent in the absence of any magnetic field), which have the same transition dipole with a maximum Rabi frequency. For the latter field polarization (parallel to [011]), we address both sites with \vec{D} parallel to [010] (sites of classes V and VI in Fig. 2) and \vec{D} parallel to [001], but both with a Rabi frequency reduced by the $\sqrt{2}/2$ projection factor. The difference between the two curves in Fig. 3 is then a pure geometric effect (projection of the polarization). Any polarization angle between [001] and [010] would produce a composite nutation signal involving two sets of sites (classes I and II) and (classes V and VI) with frequencies given simply by the projection angle: this is experimentally observed. Although this measurement is simple, it supports our crystal-field analysis and gives an optical confirmation of the electric dipole orientation together with an appraisal of the crystalline quality of our sample.

III. OPTIMIZATION OF THE MAGNETIC-FIELD ORIENTATION

The optimization of the external magnetic-field orientation is meant to simultaneously satisfy the following con-

TABLE III. Magnetic-field orientation in the crystallographic frame simultaneously achieving a high branching ratio and a high absorption. Only two classes are then magnetically equivalent (good classes). The other classes, with poor R values (bad classes), are switched off by choosing a particular laser polarization E .

Magnetic-field orientation (θ, ϕ) (deg)	Good classes		Bad classes		
	Type	R	Type	R	Extinction
(86.8,90)					
(93.2,90)	I, II	0.13	III, IV, V, VI	$<5 \times 10^{-3}$	$E//$ [001]
(90,90) ($//$ [010])	I, II	0.12	III, IV, V, VI	$<5 \times 10^{-3}$	$E//$ [001]
(3.2,0)					
(-3.2,0)	III, IV	0.13	I, II, V, VI	$<5 \times 10^{-3}$	$E//$ [010]
(0,90) ($//$ [001])	III, IV	0.12	I, II, V, VI	$<5 \times 10^{-3}$	$E//$ [010]
(90,3.2)					
(90,-3.2)	V, VI	0.13	I, II, III, IV	$<5 \times 10^{-3}$	$E//$ [100]
(90,0) ($//$ [100])	V, VI	0.12	I, II, III, IV	$<5 \times 10^{-3}$	$E//$ [100]

straints: (i) maximize the branching ratio R ; (ii) maximize the absorption, which implies the least number of magnetically nonequivalent classes. In the final step, by choosing the laser polarization, we shall take advantage of the well-defined electric dipole orientation of the ${}^3\text{H}_6(0) \rightarrow {}^3\text{H}_4(0)$ transition (Fig. 2) to switch off the classes with poor R value or/and the classes that we did not manage to render magnetically equivalent.

We start by computing the hyperfine splittings, which depend on the orientation (θ, ϕ) of the external magnetic field, by diagonalizing the H_{SH} Hamiltonian both in the ground and the excited states. We then try to find particular values of (θ, ϕ) for which the hyperfine splittings of each class are equal to one another. Because the principal axes of the Λ tensor do not have the same orientation at the ${}^3\text{H}_6(0)$ and ${}^3\text{H}_4(0)$ levels, we need to check that the latter equality holds within both the excited and the ground states. We then compute the branching ratio R for the set of (θ, ϕ) values previously found and then extract the (θ, ϕ) orientation which maximizes the R value.

There is no particular orientation of the magnetic field for which more than two classes can be made magnetically equivalent within both the ground and the excited states. The only situation that satisfies our constraints is to have class I equivalent to class II, class III equivalent to class IV, or class V equivalent to class VI. In those cases, only the external magnetic-field orientations given in Table III lead to a satisfactory branching ratio.

For example (Table III), in the crystallographic frame, for a $(\theta, \phi) = (90^\circ, 3.2^\circ)$ orientation, classes V and VI are equivalent with a branching ratio $R = 0.13$. For this orientation, classes III and IV are equivalent but not classes I and II and all four of them exhibit a poor branching ratio, $R < 5 \times 10^{-3}$. As we can see in Fig. 2 and Table III, classes I, II, III and IV can be switched off by polarizing the laser along the [100] crystallographic direction. If we try to obtain the previously mentioned maximum R value of 0.29, then only one class contributes to the absorption and for classes I, II, III, IV, V, and VI, we find the following external magnetic-field orientations in the crystallographic frame: $(\theta, \phi) = (92.7^\circ, 101.5^\circ)$, $(\theta, \phi) = (87.3^\circ, 78.5^\circ)$, $(\theta, \phi) = (11.8^\circ, 76.7^\circ)$, $(\theta, \phi) = (168.2^\circ, 103.3^\circ)$, $(\theta, \phi) = (101.5^\circ, 2.7^\circ)$, and $(\theta, \phi) = (78.5^\circ, 2.7^\circ)$, respectively.

IV. STARK EFFECT

Interest in the Stark effect of solids was recently renewed thanks to its potential for quantum light storage.⁴⁻⁶ The influence of static electric field has been studied for decades and was recently reviewed on the celebration of Kaplyanskii's 75th birthday,¹⁸ whose name is closely associated with the pioneer measurements.¹⁹

In $\text{Tm}:\text{Y}_2\text{O}_3$, we expect to observe a pseudo-Stark splitting.²⁰ Indeed, as shown in Fig. 2, the different sites with opposite permanent electric dipole orientations undergo opposite Stark shifts under a static electric field. To set the picture, a laser propagating along [100], as well as an electric field along [001], would lift the electric nonequivalency of the sites belonging to classes I and II (opposite shifts). In this

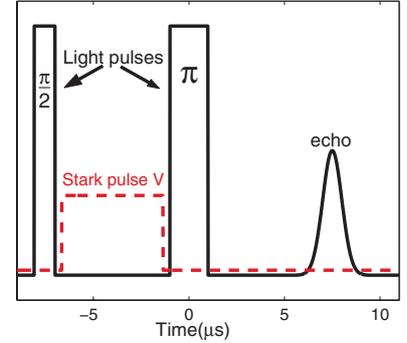


FIG. 4. (Color online) Stark-modulated photon echo. An electric-field pulse in between the optical pulses of a two-pulse photon echo is applied.

case, we observe a splitting into a doublet by hole-burning spectroscopy.²¹ This technique can be used to give us a good order of magnitude for the linear Stark coefficient. In order to provide a more accurate measurement, Stark-modulated photon echo was performed.²² This very sensitive technique makes the coherences of two inverted sites interfere within a two-pulse photon echo. This leads to a modulation of the photon echo intensity as a function of the duration and magnitude of the level splitting induced by a dc electric field (Stark pulse) that is applied in between the two pulses of the echo sequence (see Fig. 4). During the free evolution of the coherences, the application of the Stark pulse induces a differential phase shift between two inverted sites. If, for example, the phase difference is exactly π , these two sites would independently emit echoes that would simply be out of phase. In that case, because of the totally destructive interference, there is no buildup of polarization and no field is radiated after the second light pulse.

In order to apply a static electric field along one crystallographic axis (defined as [001]), we stick a pair of elec-

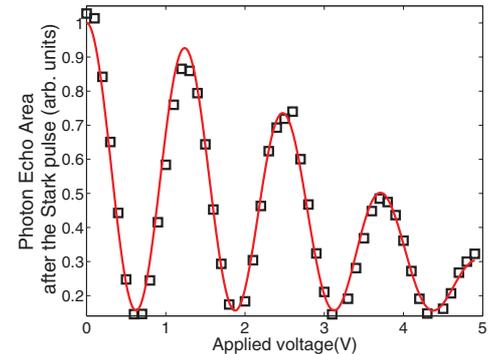


FIG. 5. (Color online) Stark-modulated photon echo as function of the electric-field voltage. The electric field is applied along one crystal axis (defined as [001]); its duration is kept constant at 5.3 μs . We vary the voltage applied on the electrodes and measure the area of the emitted echo. The delay between the two light pulses is 6 μs . The temperature of the sample is 1.2 K. The damping is fitted by a sinc-square curve (solid red line).

trodes on our orientated crystal separated by 3 mm. We measured the area of the emitted echo as a function of Stark pulse voltage by keeping the duration of the electric pulse constant and varying the applied voltage V (Fig. 5). The oscillation period gives us the frequency difference between the sites with opposite dipoles, which is simply two times the linear Stark shift. We measured an oscillation frequency of 75 kHz/V, which for electrodes separated by 3 mm, gives a Stark coefficient of 22 kHz cm/V. This result should, however, be taken with precaution because of the high dielectric constant (18) of the yttrium oxide host.²³ Indeed, our electrodes are not vapor deposited on the crystal but simply stuck in contact with it, and a tiny gap might thus remain between the electrode and the crystal (hundreds of microns). As a consequence, this would strongly reduce the electric field inside the sample because the air gap thickness multiplied by the dielectric constant is comparable to the electrode spacing. Therefore our measurement gives only a lower bound for the Stark coefficient with a good order of magnitude. The oscillation damping (Fig. 5) can originate from an electric-field inhomogeneity due, for example, to the fringing effect inside a sample of large dielectric constant. To a first approximation, a linear dependency of the field along the propagation axis would lead to a sinc-shape damping curve. This theoretical curve (solid red line in Fig. 5) properly fits the experimental data. The inhomogeneity is then estimated to be around 15% along the sample.

V. CONCLUSION

We showed in this work that $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ is an interesting candidate for quantum storage application. Indeed, it meets

two main requirements toward this goal. First of all, a three-level Λ system can efficiently be tailored in this sample. Second, we experimentally singled out a linear Stark effect on the ${}^3\text{H}_6(0) \rightarrow {}^3\text{H}_4(0)$ transition, which is the key element in the protocol relying on controlled and reversible inhomogeneous broadening. To the best of our knowledge, these two properties were never investigated at the same time in a thulium-doped crystal, whose absorbing wavelength is particularly convenient for most of the applications.

To conclude this paper, let us briefly comment on the limited optical coherence time of a few microseconds in this material. Our measurements of a relatively short coherence time in this sample (4 μs at 3 K and 9 μs at 1.2 K by two-pulse photon echo decay) confirmed the results of Sun in p. 403 of Ref. 17. It is an order of magnitude shorter than in the well-studied $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, a fact previously considered as a good reason to reject $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ for coherent applications. However, in our opinion, this host should be reevaluated in the framework of quantum storage. Indeed, even though the protocol involves the optical coherences as a primary information carrier (direct absorption), a rapid transfer to the Raman coherences allows going beyond the optical dephasing lifetime for the storage. The optical dephasing time should not be considered as an ultimate limitation for our specific application. The ability to perform a Raman transfer is directly related to the presence of a Λ -system between three hyperfine levels.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank Jacquet for technical assistance in polishing and orienting the sample used in this work. We would like to thank Pr. R. Cone for discussions and sharing experimental data for comparison.

- ¹M. Fleischhauer and M. D. Lukin, Phys. Rev. A **65**, 022314 (2002).
- ²A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, and P. R. Hemmer, Phys. Rev. Lett. **88**, 023602 (2001).
- ³I. D. Abella, N. A. Kurnit, and S. R. Hartmann, Phys. Rev. **141**, 391 (1966).
- ⁴M. Nilsson and S. Kröll, Opt. Commun. **247**, 393 (2005).
- ⁵A. L. Alexander, J. J. Longdell, M. J. Sellars, and N. B. Manson, Phys. Rev. Lett. **96**, 043602 (2006).
- ⁶B. Kraus, W. Tittel, N. Gisin, M. Nilsson, S. Kroll, and J. I. Cirac, Phys. Rev. A **73**, 020302(R) (2006).
- ⁷J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars, and N. B. Manson, Phys. Rev. Lett. **95**, 063601 (2005).
- ⁸G. Hétet, J. J. Longdell, A. L. Alexander, P. K. Lam, and M. J. Sellars, Phys. Rev. Lett. **100**, 023601 (2008).
- ⁹O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, E. Antic-Fidancev, and J.-L. Le Gouët, Phys. Rev. B **71**, 174409 (2005).
- ¹⁰A. Louchet, J. S. Habib, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Goldfarb, F. Bretenaker, J. L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and P. Goldner, Phys. Rev. B **75**, 035131 (2007).
- ¹¹A. Louchet, Y. Le Du, T. Brouri, F. Bretenaker, T. Chanelière, F. Goldfarb, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët, Solid State Sci. (to be published).
- ¹²R. V. Leavitt, J. B. Gruber, N. C. Chang, and C. A. Morrison, J. Chem. Phys. **76**, 4775 (1982).
- ¹³W. T. Carnall, G. L. Goodman, K. Rajnak, and R. S. Rana, J. Chem. Phys. **90**, 3443 (1989).
- ¹⁴B. G. Wybourne, *Spectroscopic Properties of Rare Earths* (Interscience, New York, 1965).
- ¹⁵Y. Sun, G. M. Wang, R. L. Cone, R. W. Equall, and M. J. M. Leask, Phys. Rev. B **62**, 15443 (2000).
- ¹⁶J. H. Mun, A. Jouini, A. Novoselov, Y. Guyot, A. Yoshikawa, H. Ohta, H. Shibata, Y. Waseda, G. Boulon, and T. Fukuda, Opt. Mater. (Amsterdam, Neth.) **29**, 1390 (2007).
- ¹⁷Y. C. Sun, *Rare Earth Materials in Optical Storage and Data Processing Applications Spectroscopic Properties of Rare Earths in Optical Materials*, edited by G. Liu and B. Jacquier (Springer, Berlin, 2005), Chap. 7.
- ¹⁸R. M. MacFarlane, J. Lumin. **125**, 156 (2007).
- ¹⁹A. Kaplyanskii, J. Lumin. **100**, 21 (2002).
- ²⁰W. Kaiser, S. Sugano, and D. L. Wood, Phys. Rev. Lett. **6**, 605 (1961).
- ²¹R. M. Shelby and R. M. Macfarlane, Opt. Commun. **27**, 399 (1978).
- ²²Y. P. Wang and R. S. Meltzer, Phys. Rev. B **45**, 10119 (1992); A. J. Meixner, C. M. Jefferson, and R. M. Macfarlane, *ibid.* **46**, 5912 (1992).
- ²³M. Agarwal, M. R. DeGuire, and A. H. Heuer, Appl. Phys. Lett. **71**, 891 (1997).

Annexe D

Article sur les échos de photon à deux impulsions envisagés comme protocole de stockage

Ci-après est présenté l'article [11] tel qu'il a été publié dans *Physical Review A*.

Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol

Jérôme Ruggiero,¹ Jean-Louis Le Gouët,¹ Christoph Simon,² and Thierry Chanelière^{1,*}

¹Laboratoire Aimé Cotton, CNRS-UPR 3321, Université Paris-Sud, Bât. 505, 91405 Orsay Cedex, France

²Group of Applied Physics, University of Geneva, CH-1211 Geneva 4, Switzerland

(Received 3 October 2008; revised manuscript received 5 March 2009; published 27 May 2009)

We consider in this paper a two-pulse photon echo sequence in the prospect of quantum light storage. We analyze the conditions where quantum storage could be realistically performed. We simply and analytically calculate the efficiency in that limit, and clarify the role of the exactly π -rephasing pulse in the sequence. Our physical interpretation of the process is well supported by its experimental implementation in a Tm^{3+} :yttrium aluminum garnet crystal thanks to an accurate control of the rephasing pulse area. We finally address independently the fundamental limitations of the quantum fidelity. Our work allows us to point out on one side the real drawbacks of this scheme for quantum storage and on the other side its specificities which can be a source of inspiration to conceive more promising procedures with rare-earth ion doped crystals.

DOI: 10.1103/PhysRevA.79.053851

PACS number(s): 42.50.Md, 42.50.Gy, 03.67.-a

I. INTRODUCTION

The prospect of quantum light storage in solids motivates us to reconsider the interaction of light and matter at the single-quantum level. Rare-earth ion doped crystals (REIC) appeared very attractive. As compared to atomic vapors the storage time can be long as well but is not limited by the atomic diffusion whatsoever. Recent memory protocols involving REIC are of course inspired by previous realizations of classical light memories [1] and more generally all-optical processing [2]. In this lineage recent progresses toward quantum storage involve common physical ingredients. Because of the large inhomogeneous broadening, any light retrieval is intimately related to a dipole rephasing. The conventional photon echo is obviously coming to mind. Since the pioneering studies of the 1960s [3], it has been massively used as a fine spectroscopic tool. It has then been considered for classical light storage with impressive realizations. The natural extension of this work in the quantum domain has been addressed more recently [4] and is more generally a source of inspiration to conceive original protocols [5–11]. An important figure of merit is of course the efficiency.

Since the observation [3] and the interpretation [12] of the photon echo, the quantitative comparison with the observed efficiency has been widely studied. As a fine spectroscopic tool, an optimization of its observation was particularly useful [13]. At the basis of data processing application, the interest has been renewed relatively recently [14,15]. The two-pulse photon echo (2PE) is using a strong light pulse to produce the rephasing and trigger the retrieval. In order to have an insight of the phenomenon at very low light level and more generally to examine the effect of an optical manipulation of the coherences, we study the efficiency of the 2PE in this regime. The conditions where an echo would be observed with weak quantum field are actually very specific. The retrieval efficiency has been extensively studied essentially thanks to a numerical resolution of the Bloch-Maxwell equations [14–17]. The results are general and cover a wide

range of parameters. Large efficiencies have been predicted and observed experimentally [17]. Motivated by a discrepancy between the observation and the prediction, Tsang *et al.* developed an analytical calculation [18] based on the weak area approximation for the signal [19]. Even if the results are slightly restrictive as compared to a fully numerical resolution, it gives a much better understanding of the rephasing process. This situation would be appropriate for the storage of weak quantum fields.

We reexamine these conditions. Our analytical derivation is based on a simple physical interpretation of the atomic state evolution through the pulse sequence. We then obtain an analytical formula for the efficiency. We also address the problem of the potential distortion of the signal. This point has been mentioned by Sjaarda Cornish *et al.*, and was a source of divergence between theory and experiment [14,17,18]. More specifically in our study, we clearly identify the conditions validating our calculations for which the signal is not distorted. Our experimental setup is designed to fulfill this criterion. We explicitly show that the rephasing process is very critical for an exactly π -rephasing pulse. As compared to the previous analysis where rephasing pulse areas slightly below π were considered as optimized [14,17,18], we show that the efficiency is actually very peaked in the vicinity of π . The case of the exactly π -rephasing pulse has been already considered in the prospect of quantum storage by Rostovtsev *et al.* [4]. However they assume that the rephasing is performed by a “hard pulse” (much shorter than the inverse of the inhomogeneous width). This condition is not very realistic because it would demand a very intense short pulse. We show that actually this result is also perfectly valid for any π -rephasing pulse especially when its bandwidth is narrower than the absorption profile. Most of the experiments are performed in this regime. Our analysis is very well supported by original experimental results. In practice we focus on the control of the rephasing pulse area and exhibit clearly the expected dependency. We finally discuss the potential extension in the quantum domain by estimating the expected fidelity with a simple model. Thanks to our experimental study of the 2PE in the classical weak signal limit, we can already point out the limitations in the quantum domain. With respect to other proto-

*thierry.chaneliere@lac.u-psud.fr

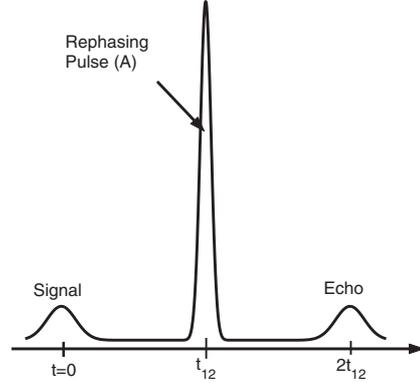


FIG. 1. Outline of the time sequence. The signal is first absorbed in the medium. After a time t_{12} a rephasing pulse of large area A induces a buildup of the coherence at the time $2t_{12}$ and gives rise to the photon echo. We address the problem in the weak signal and the echo regime, which shall be satisfied in quantum field conditions.

cols, we finally identify the advantages and drawbacks of this technique that should be considered as a general tool for coherent manipulations.

II. EFFICIENCY OF THE PROTOCOL

This subject has been covered by a wide range of literature [14–18]. Nevertheless it is relatively easy to derive these equations based on simple physical arguments. The interaction of light pulses with our medium is well described by the Maxwell-Bloch equations assuming the slowly varying amplitude and the rotating wave approximations:

$$\begin{aligned}\partial_z \Omega(z, t) &= -\frac{\alpha}{2\pi} \int d\omega_{ab} v(\omega_{ab}; z, t), \\ \partial_t u(\omega_{ab}; z, t) &= -\Delta v(\omega_{ab}; z, t), \\ \partial_t v(\omega_{ab}; z, t) &= -\Omega(z, t)w(\omega_{ab}; z, t) + \Delta u(\omega_{ab}; z, t), \\ \partial_t w(\omega_{ab}; z, t) &= \Omega(z, t)v(\omega_{ab}; z, t),\end{aligned}\quad (1)$$

where $\Delta = \omega_{ab} - \omega_L$ is the detuning, Ω is the Rabi frequency of the field under consideration and (u, v, w) are the three components of the Bloch vector. The decay of the coherences and the population is assumed to be negligible. We have dropped the usual term $\partial_t \Omega(z, t)$ because realistically the spatial extension of the pulse is always much longer than the length of our crystal.

To describe the broadest range of the situation, a numerical resolution of the system is usually necessary [15]. This is not our approach. We will show under realistic conditions that the problem is fully solvable. A sketch of the time sequence is depicted in Fig. 1 and looks like any 2PE sequence. Nevertheless within the prospect of quantum storage, the signal and the echo are assumed to be weak. This greatly simplifies the description [19] essentially because

these two fields do not modify the population difference $w(\omega_{ab}; z, t)$ that is not time dependent anymore. This is the small-area approximation where the Maxwell-Bloch system can be linearized [19].

A. Calculation in the weak signal limit

If the three pulses are well separated in time, one can consider them independently. The signal, the rephasing pulse, and the echo are, respectively, centered on $t=0$, t_{12} , and $2t_{12}$. The incoming signal and outgoing echo Rabi frequencies are, respectively, denoted as \mathcal{S} and \mathcal{E} . The propagation of \mathcal{S} is simply described by an absorption law if the atoms are initially in the ground state $w(\omega_{ab}; z, -\infty) = w(\omega_{ab}; z, 0) = -1$ [19]:

$$\partial_z \mathcal{S}(z, t) = w(\omega_{ab}; z, 0) \frac{\alpha}{2} \mathcal{S}(z, t) = -\frac{\alpha}{2} \mathcal{S}(z, t). \quad (2)$$

The weak echo is expected to behave in a similar way except that the medium has been previously excited and modified by the signal and the rephasing pulse. Therefore the echo equation reads as

$$\partial_z \mathcal{E}(z, t) = w(\omega_{ab}; z, 2t_{12}) \frac{\alpha}{2} \mathcal{E}(z, t) - \frac{\alpha}{2\pi} \int d\omega_{ab} v_E(\omega_{ab}; z, t). \quad (3)$$

The coherence v_E , resulting from interaction with the first two pulses, evolves freely within the time interval $t_{12} \rightarrow 2t_{12}$. The population $w(\omega_{ab}; z, 2t_{12})$ has been affected by the rephasing pulse. We assume the rephasing pulse is much shorter than \mathcal{S} . Therefore the population is uniformly modified by the rephasing pulse all over the spectral interval initially excited by \mathcal{S} . We will see in Sec. III how this constraint is treated experimentally. A second benefit of this assumption is that the rephasing pulse can be considered as instantaneous (time t_{12}) and, then, uniformly modifying the coherences. The physical interpretation of Eq. (3) is based on the generation of \mathcal{E} by the macroscopic dipole that builds up when the coherences v_E get phased together. The growing field propagates through the medium characterized by the uniform population difference $w(\omega_{ab}; z, 2t_{12})$.

We aim at reducing Eq. (3) by expressing the atomic quantities in terms of the optical fields only. We shall be left with an equation of propagation for \mathcal{E} . The echo efficiency will be deduced from the solution of this equation. We first have to track the excitation of the coherences by the signal, then their modification by the rephasing pulse, and finally their free evolution toward the echo emission. The problem is addressed locally, at position z . The signal \mathcal{S} excites the atoms that initially all sit in the ground state:

$$u(\omega_{ab}; z, t) + iv(\omega_{ab}; z, t) = i \exp(i\Delta t) \int_{-\infty}^t \mathcal{S}(z, \tau) \exp(-i\Delta \tau) d\tau. \quad (4)$$

At a certain time t between 0 and t_{12} the signal field is off. We then recognize the Fourier transform of \mathcal{S} written $\tilde{\mathcal{S}}$, and the $\exp(i\Delta t)$ accounts for the free evolution during this interval:

$$u(\omega_{ab};z,t) + iv(\omega_{ab};z,t) = i \exp(i\Delta t) \tilde{S}(z, \Delta). \quad (5)$$

This expression represents the evolution of the coherence after the initial absorption process and before the rephasing pulse. Next, we calculate this strong pulse effect on the coherences (how v_E is related to v) and on the population, which modifies the echo propagation [Eq. (3)]. This can be done analytically by integrating the Bloch-Maxwell equations (see Ref. [18]). Nevertheless the results are relatively intuitive at the end and can be derived from simple physical ingredients. This can be done first of all in the specific case of a π -rephasing pulse. This would correspond to the case of hard pulses uniformly covering the dipole. This situation has been addressed by Rostovtsev *et al.* [4]. The more general case of an area $A(z)$ for the strong pulse can be solved by introducing “by hand” geometrical factors. All over the spectral interval excited by the signal pulse, the rephasing pulse is assumed to behave as a π pulse. This corresponds to a brief pulse assumption. The experimental fulfillment of this condition will be addressed in Sec. III. A π pulse simply drives the Bloch vector by a rotation of π around an equatorial axis. On one hand, along the population axis it corresponds to an inversion from -1 to $w(\omega_{ab};z, 2t_{12})=1$ at time t_{12} . On the other hand, it transforms the coherences $v(\omega_{ab};z, t_{12}) \rightarrow -v(\omega_{ab};z, t_{12})$, while $u(\omega_{ab};z, t_{12})$ stays the same (complex conjugation of $u+iv$). Right after the rephasing pulse, Eq. (5) becomes

$$u_E(\omega_{ab};z,t) + iv_E(\omega_{ab};z,t) = i \exp[i\Delta(t-t_{12})] \tilde{S}^*(z, \Delta) \exp(-i\Delta t_{12}), \quad (6)$$

where the complex conjugation sign $*$ accounts for the rephasing transformation. The coherences are freely evolving after t_{12} . One can now write the propagation equation of the echo [Eq. (3)] by including the direct influence of the signal on $v_E(\omega_{ab};z,t)$. With the signal field being assumed to be a real number, one recognizes the time-reversed signal $S(z, 2t_{12}-t)$ whose z dependency is given by an absorption law $S(z, 2t_{12}-t) = S(0, 2t_{12}-t) \exp(-\alpha z)$ [Eq. (2)]

$$\partial_z \mathcal{E}(z,t) = + \frac{\alpha}{2} \mathcal{E}(z,t) - \alpha S(z, 2t_{12}-t). \quad (7)$$

The signal field acts as a source and generates the echo that propagates in an inverted medium. This gives the equation of propagation for a π -rephasing pulse. It is now rather easy to account for an imperfect rephasing. More generally, a $A(z)$ -area strong pulse drives an $A(z)$ rotation of the Bloch vector. The population is not fully inverted anymore: $w(\omega_{ab};z, 2t_{12}) = -\cos A(z)$. The rotation of the coherences is also incomplete and limited to $\{1 - \cos[A(z)]\}/2$ of its maximum value. These factors are purely geometrical and are interpreted as projections on the Bloch sphere. We finally get the general analytic expression for the efficiency. This expression has been previously derived by Tsang *et al.* {Eq. (40) of [18]} by integrating the Bloch-Maxwell equations. Here we simply focus on the two crucial stages: the absorption of the signal on one side and the reemission of the echo on the other side. The rephasing pulse in between is interpreted as an instantaneous manipulation of the Bloch vector:

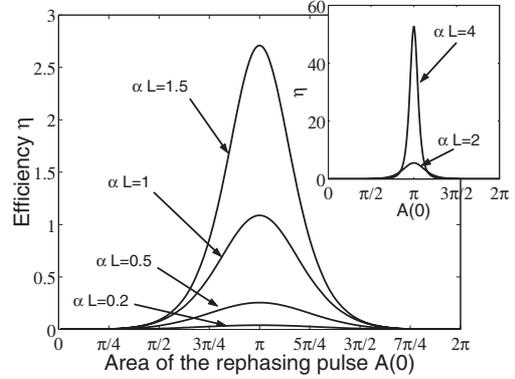


FIG. 2. Efficiency of the 2PE as a function of the rephasing pulse area $A(0)$ for different optical thickness αL . Inset: for larger αL , the efficiency is much larger than unity at the maximum rephasing.

$$\partial_z \mathcal{E}(z,t) = -\cos[A(z)] \frac{\alpha}{2} \mathcal{E}(z,t) - \frac{1 - \cos[A(z)]}{2} \alpha S(z, 2t_{12}-t). \quad (8)$$

There is an underlying assumption here: the rephasing pulse is very brief and is then fully covering the spectral range of excitation. As a consequence the echo is not deformed as compared to the signal, it is only time reversed. The $A(z)$ rotation on the Bloch sphere is also uniform and does not depend on Δ . The z dependency of the area accounts for the propagation of the strong pulse itself. This is usually a complicated problem but in that case we are only interested in the propagation of the area. The result is remarkably simple and is given by the area theorem of McCall and Hahn [20]. We do not have to know the exact temporal shape through the propagation because the area is the relevant quantity for the rephasing pulse and is simply given by

$$\partial_z A(z) = -\frac{\alpha}{2} \sin A(z). \quad (9)$$

It can be solved analytically for a given $A(0)$. A straightforward integration of Eq. (8) allows us to calculate the retrieval efficiency η as a function of the optical thickness αL , where L is the length of the medium:

$$\eta[A(0), \alpha L] = \left(\frac{\mathcal{E}(L,t)}{S(0, 2t_{12}-t)} \right)^2 = \left(\frac{2 \sinh(\alpha L)}{1 + \exp(\alpha L) \cot^2[A(0)/2]} \right)^2. \quad (10)$$

For different optical thickness αL , we plot the efficiency as a function of the rephasing pulse area $A(0)$ in Fig. 2. We observe in that case that the efficiency is strongly depending on the optical thickness. When it is low, the efficiency is weak essentially because the signal is poorly absorbed. The efficiency is then a sinuslike function and the rephasing area directly accounts for an imperfect rotation on the Bloch

sphere. On the other side, at large optical thickness, the efficiency can be much larger than unity but only on a narrow window around a π . This specific situation is certainly the most interesting because the signal is fully mapped into the medium (large optical thickness) and the efficiency is exceptionally large. The π -rephasing pulse has very particular properties that can be interpreted independently to physically understand this behavior.

B. Specificity of the π -rephasing pulse

Even if the case of an exact π -rephasing pulse is relatively straightforward, it has not been explicitly pointed out to our knowledge. More fundamentally it allows us to understand the expected efficiency at large optical thickness. We simply derived the propagation equation (7) for the echo by assuming that locally, at position z , the area is exactly π . Now we have to examine the π -pulse propagation inside the medium. This is a very specific situation. According to Eq. (9) a π pulse preserves its initial area throughout the medium. Even if the energy is absorbed, the area is conserved as the pulse stretches temporally [21]. Roughly speaking, if the pulse is elongated by a factor r , the amplitude (Rabi frequency) is reduced by r to conserve the area and the energy decreases by a factor r . This alteration is a pure coherent propagation effect.

The propagation equation ((7)) is then valid at any position z and easily gives the efficiency. This expression is consistent with our general formula [Eq. (10)]:

$$\eta(\pi, \alpha L) = [\exp(\alpha L/2) - \exp(-\alpha L/2)]^2. \quad (11)$$

A similar expression has been derived by Rostovtsev *et al.* [Eq. (23) of [4]] by assuming that the rephasing pulse is a hard pulse. We show here that this expression is more general. It is also applicable when the pulse bandwidth is much narrower than the inhomogeneous width. At large optical thickness, the efficiency is much larger than unity and grows exponentially. This is relatively counterintuitive. The echo efficiency is generally observed to be low, which is usually assigned to absorption. As mentioned before the π -rephasing pulse retains its area along the propagation. In other words, the medium is completely inverted: the echo is emitted in an amplifying medium. This explains why the echo is gaining exponentially. Practically, the assumptions we made, such as one-dimensional infinite plane-wave geometry, will be difficult to satisfy. Any divergence from the ideal theoretical frame shall affect the echo efficiency.

The π -pulse propagation is not only unusual, it is also a singular solution of the area theorem. The π solution is indeed not stable because any area slightly lower (or larger) than π will decrease (or increase, respectively) toward 0 (or 2π , respectively) [20,21]. Even so, the pulses with an area close to π can propagate deeper inside the medium than a weak pulse. To see that we plot in Fig. 3 the penetration depth L_p at which the incoming area is divided by $1/\sqrt{e}$ (the curve is symmetrized around π to account for the deviation toward 2π of pulses larger than π).

For small areas, this length is α^{-1} as expected [19]. As one gets closer to π , the pulse can propagate much deeper

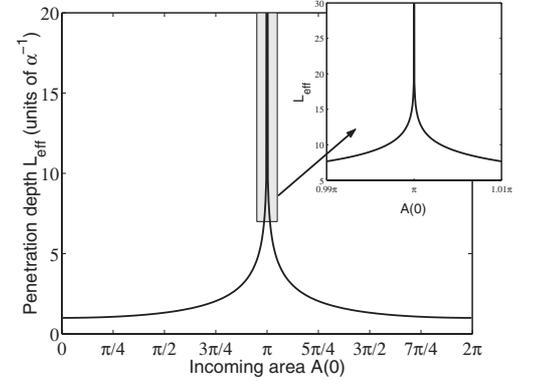


FIG. 3. Penetration depth L_p of a strong pulse in unit of α^{-1} as a function of the incoming area. Inset: penetration of pulses with area of π plus or minus 1%. For small-area pulses, it is simply given by an absorption law $L_p = \alpha^{-1}$.

inside the medium. For example, if the incoming area is controlled at the 1% level (inset of Fig. 3), the penetration depth is larger than $7\alpha^{-1}$. The curve is very narrow about π which shows a high sensitivity for the propagation. Realistically a well-controlled π pulse should induce a population inversion much deeper inside the medium than the absorption length α^{-1} . If this depth is larger than the optical thickness of the medium, it will be fully inverted. However, the deeper the π pulse propagates through the absorbing medium, the more it is stretched since it has to keep a constant area while losing energy. The pulse bandwidth shrinks accordingly, making the pulse act as a π pulse on a reduced spectral interval [21].

Based on this analysis, we expect to observe two remarkable qualitative features. The efficiency should be very high at large optical thickness and strongly depending on the area of the rephasing pulse.

III. EXPERIMENTS

A 2PE experiment can be performed in any system where a transient phenomena can be observed. Here we use a thulium-doped yttrium aluminum garnet (YAG), cooled down to cryogenic temperature. The long optical coherence time makes it particularly attractive for quantum storage application. We will now briefly describe the experimental setup and focus on the precautions we take to satisfy the assumptions introduced previously.

A. Experimental setup

Our 0.5% Tm^{3+} :YAG crystal is immersed in liquid helium at 1.4 K. The coherence time of the $^3\text{H}_6(0)$ to $^3\text{H}_4(0)$ transition is typically $T_2 = 50 \mu\text{s}$ in these conditions. The crystal is oriented and cut in order to propagate along the $[1\bar{1}0]$ direction. Along this axis, the length is 5 mm and the optical thickness $\alpha L = 5$. The laser polarization is parallel to $[111]$ to maximize the Rabi frequency [22]. The laser system is operating at 793 nm, stabilized on a high-finesse Fabry-

Perot cavity with the Pound-Drever-Hall technique (200 Hz over 10 ms) [23]. The laser is split in two independent beams. Temporal shaping is achieved by two acousto-optic modulators (AOM) controlled by a dual channel arbitrary waveform generator (Tektronix AWG520). Both beams are injected into two single mode fibers. Before recombination on a beam splitter, we use expanders to independently manage their waists inside the crystal. After the sample, the signal is collected in a single mode fiber terminated by a photodiode.

The signal is supposed to mimic a weak quantum field so that this pulse should verify the small-area approximation. The signal beam is in practice much weaker than the rephasing one. At the maximum, there is a 36 dB power difference between the two. More precisely, the signal area is kept constant at 9% of π and we vary the rephasing pulse area $A(0)$ from 0 to 3π .

Keeping the rephasing pulse significantly briefer than the signal pulse is the most stringent condition we have to satisfy. This is required to maintain a uniform coverage of the rephasing process over the signal excitation bandwidth. To do so, we use Gaussian-shaped signal (duration 2.1 μs) and rephasing pulses. On one hand a Gaussian pulse is spectrally narrower than a rectangular pulse with the same duration. On the other hand we observed a Gaussian π pulse undergoing a less temporal stretching than a rectangular one after propagation through an absorbing medium. We set the rephasing pulse ≈ 2.5 times shorter than the signal. This value is slightly fluctuating depending on the rephasing amplitude value. Changing the AOM driving power marginally impacts on the pulse shape. A much shorter pulse would be preferable but we are limited by the available power (few milliwatts) to ensure a significant area in a reasonable time.

One last point we ignored so far is the transverse dimension of the beams. To be consistent with the one-dimensional theory, the power of the rephasing beam should be constant over the spatial extension of the signal. The signal beam waist (17 μm) is then chosen to be two times smaller than the waist of the rephasing beam (35 μm). This is the same overlap argument we used in the spectral domain.

B. Results

We perform a 2PE experiment in the before mentioned conditions (see Fig. 4). We pay special attention to an accurate calibration of the rephasing pulse area. We indeed first perform an optical nutation experiment to evaluate the exact Rabi frequency of the pulse. Comparing the signal and rephasing beam intensities, we estimate the area of the signal which is confirmed to be weak (0.09π).

As expected, we observe an echo at delay t_{12} after the rephasing pulse (see Fig. 4). We also carefully calibrate the efficiency. To do so, we shift the laser far from the absorption line (a few cm^{-1}). The corresponding intensity level represents the 100% reference line on the measurement detector. According to the efficiency definition given by Eq. (10), the echo is assumed to exhibit the time-reversed temporal shape of the signal. This is not exactly the case experimentally as we shall discuss later. As such we define the efficiency by comparing the maxima of the two pulses:

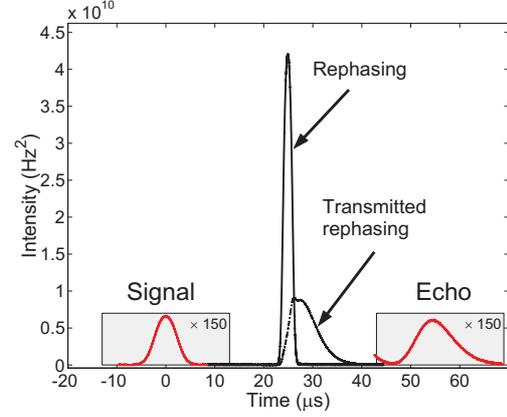


FIG. 4. (Color online) Time sequence for 1.1π -rephasing pulse. With the signal and the echo being very weak, we magnify their scale by a factor of 150 (solid red line). The intensity is given as the square of the Rabi frequency. The signal and the rephasing pulse have a duration of 2.1 and 0.8 μs , respectively (rms width of the Gaussian). We also represent the rephasing pulse after transmission (dashed line in Arb. units).

$$\eta_{\text{exp}}(A(0)) = \left(\frac{\max_t[\mathcal{E}(L, t)]}{\max_t[\mathcal{S}(0, t)]} \right)^2. \quad (12)$$

By varying the incoming rephasing area, we obtain η_{exp} as a function of $A(0)$ (see Fig. 5).

The main source of uncertainty is due to the alignment and the spatial overlap of the beams in the crystal. To quantify it and derive error bars, we estimate the typical intensity variation in the rephasing beam (waist of 35 μm) over a length corresponding to the signal waist (17 μm). This is simply given by the direct comparison of two Gaussian curves (11% in that case, which gives the horizontal error bars in Fig. 5).

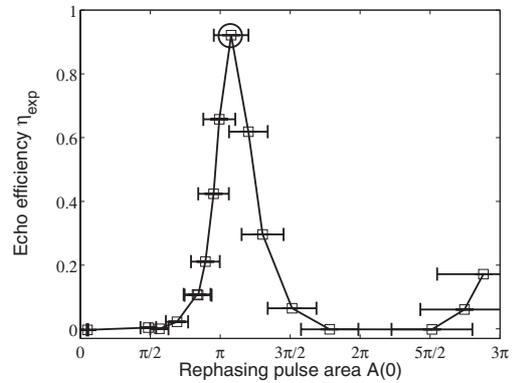


FIG. 5. Efficiency of the echo retrieval as a function of the rephasing pulse area $A(0)$. The maximum (circle) is obtained for $A(0) = 1.1\pi$, where the efficiency is 92%. This corresponds to the situation depicted in Fig. 4.

C. Discussion

The experimental results are qualitatively in good agreement with the expected efficiencies in Fig. 2. The main features are indeed observed. First of all the maximum efficiency is obtained for a 1.1π area, which is consistent with π , within the error bar. We also observe a reincrease in the efficiency close to 3π after a minimum at 2π . We certainly predict a maximum at any odd number of π but we are experimentally limited by the available laser power. Second, the curve is peaked in the vicinity of π and cannot be fitted by a sinus-shape oscillation. This is also expected (see Fig. 2) and is due to the large optical thickness of the sample $\alpha L \approx 5$. Finally, the maximum efficiency is relatively high (0.92) for $A(0)=1.1\pi$ (circle in Fig. 4). Although far below the $\eta(\pi)=146$ predicted value [Eq. (11)], this result demonstrates a highly efficient 2PE.

We can invoke many reasons to explain the discrepancy between the measured and the predicted efficiency values. (i) The first obvious one is the total duration of the time sequence. The echo is indeed decaying exponentially because of the coherence lifetime $T_2=50 \mu\text{s}$ which has been completely neglected in our treatment. In our case $t_{12}=25 \mu\text{s}$ so the echo is reduced by a factor $\exp(4t_{12}/T_2)=7.4$. Without this decay, the efficiency would be much larger than unity. In Sec. IV we shall see why t_{12} is chosen to be long for this experiment. (ii) Another limitation is certainly due to the duration of the rephasing pulse. With this pulse being 2.5 times shorter than the signal, the incoming pulse spectral overlap is rather good. However, propagation through the sample strongly stretches the rephasing pulse, as expected from discussion in Sec. III B, and as observed in Fig. 4. The pulse cannot be considered as much briefer than the incoming signal all the way through the sample. An observable proof of this effect is the retrieval time of the echo (Fig. 4). The retrieval should be centered on $t=2t_{12}=50 \mu\text{s}$. We clearly see that the echo is delayed by few microseconds. Indeed, because of stretching the rephasing pulse is no longer centered at a delay t_{12} from the signal. The retrieval time is shifted accordingly. Since one of the assumptions of our model is not fully verified, we then expect an efficiency reduction. (iii) In the spatial domain, the same argument is also valid. The signal is tightly focused ($17 \mu\text{m}$) to ensure that its waist is smaller than the rephasing beam. The associated confocal parameter is typically two times shorter than the crystal length. As such the rephasing beam does not overlap the signal uniformly all along the propagation. In other words, the rephasing area is not constant in the transverse direction. This should reduce the efficiency and broaden the peak around π (convolution effect).

Based on this analysis, we believe our model contains all the physical ingredients to explain qualitatively the experimental results. We have given three probable explanations to interpret the quantitative discrepancy with the predicted values.

IV. LIMITATIONS FOR QUANTUM MEMORY APPLICATION

As mentioned before, the investigation of classical light storage largely paved the way toward their quantum equiva-

lent. REIC have shown interesting processing capabilities especially with all-optical control [2,24]. As derived from the conventional photon echo, these techniques are based on an optical manipulation of the coherences. Experiments largely benefit from the agility of the laser controlling the crystalline processor [25]. This convenience would be still appreciable for manipulation at the quantum level. The 2PE time-to-bandwidth product properties should also be emphasized. In the 2PE process, this parameter, critical for information processing applications, is not limited by the memory opacity, in contrast with the most promising quantum storage protocols involving REIC, namely, the “stopped-light” approach [26,27], the “controlled reversible inhomogeneous broadening” (CRIB) procedure [5–8], or the “atomic frequency comb” technique [9,10]. Finally, contrary to the above storage protocols, the 2PE does not require any initial-state preparation. A spectral selection within the inhomogeneous broadening is in a sense built in because of the selective excitation of the first incoming signal pulse. The 2PE has the singular advantage to rephase a random distribution of level shifts without any assumption on the source of inhomogeneity. The coherent optical manipulation of the rephasing pulse has some noticeable advantages as compared to the previously mentioned protocols. However its application for quantum storage was not really considered as promising [28,29]. A goal of our study is precisely to give a definite answer based on relevant experimental data. Even if our experiment has been performed in the classical domain using weak small-area pulses, it tells us what should be the limitations in the quantum domain.

An obvious one is already present in our experiment. Since the rephasing pulse stretches while propagating through the sample, it gains a trailing tail that is not negligible as compared to the echo amplitude. As we can see in Fig. 4 at $t=45 \mu\text{s}$ the pulse tail is falling slightly before the echo comes out. That is the reason why we cannot make t_{12} shorter, otherwise the echo would be submerged. With only few photons in the signal, this effect would be disastrous. As already discussed, the strong pulse distortion is not an artifact. This is a coherent propagation effect [21], thus a fundamental limitation. This should not be confused with the noise induced by the fluorescence, which will be another limitation at the few photons level.

The rephasing process is inherently associated with a population inversion. The decay has been neglected in our model. In practice the medium excitation will be followed by spontaneous emission. The fidelity of the 2PE as a quantum memory protocol is fundamentally limited by fluorescence. This can already be understood within the framework of the Dicke model [30], i.e., without taking propagation effects into account. Consider an ensemble of two-level systems, where the two states are denoted $|g\rangle_k$ and $|e\rangle_k$ for the k th system. Note that we are interested in the case where the transition energy for the g to e transition is slightly different for different systems (inhomogeneous broadening).

We will compare the case where the input to be stored is a single photon to the case where there is no input (i.e., where the input state is the vacuum). The initial state of the atomic ensemble is $|\psi^0\rangle=|g\rangle_1|g\rangle_2\dots|g\rangle_N$. For a vacuum input, this state remains of course unchanged. It is then transformed

CHAPITRE D - ARTICLE SUR LES ÉCHOS DE PHOTON À DEUX IMPULSIONS ENVISAGÉS COMME PROTOCOLE DE STOCKAGE

WHY THE TWO-PULSE PHOTON ECHO IS NOT A GOOD...

PHYSICAL REVIEW A **79**, 053851 (2009)

to $|\psi^N\rangle = |e\rangle_1 |e\rangle_2 \dots |e\rangle_N$ by the π pulse. For a single-photon input, absorption of the photon creates a state of the form

$$|\psi^1\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}}(|e\rangle_1 |g\rangle_2 \dots |g\rangle_N + \dots + |g\rangle_1 |g\rangle_2 \dots |e\rangle_N), \quad (13)$$

which contains a single atomic excitation. (Propagation effects would lead to the coefficients of the N terms not being all the same.) The π pulse transforms this state into

$$|\psi^{N-1}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}}(|g\rangle_1 |e\rangle_2 \dots |e\rangle_N + \dots + |e\rangle_1 |e\rangle_2 \dots |g\rangle_N), \quad (14)$$

which has $N-1$ atomic excitations.

In an inhomogeneously broadened system, the various terms in Eqs. (13) and (14) will acquire different phases depending on the transition energies of the various atoms. However, at the time of the echo all terms will be in phase. Emission from the state $|\psi^{N-1}\rangle$ gives rise to the echo signal corresponding to a single-photon input, whereas emission from the state $|\psi^N\rangle$ corresponds to a vacuum input and thus defines the noise background due to fluorescence. The photon emission probability for a state $|\psi\rangle$ is proportional to $\|J_-|\psi\rangle\|^2$, where $J_- = \sum_{k=1}^N |g\rangle_k \langle e|_k$. This is due to the fact that the interaction Hamiltonian between the atomic ensemble and the relevant mode a of the electromagnetic field (corresponding to emission in the direction of phase matching) is proportional to $a^\dagger J_- + \text{H.c.}$

Following Ref. [30] it is easy to see that $\|J_-|\psi^{N-1}\rangle\|^2 = 2(N-1)$ and $\|J_-|\psi^N\rangle\|^2 = N$. As a consequence, the probability to emit a photon at the echo time is only twice as large for a single-photon input as for no input at all, corresponding to a signal-to-noise ratio of one. This severely limits the achievable fidelity of quantum state storage.

Finally, from what we have shown in this paper, we can conclude that the efficiency is actually too high for quantum memory application. We indeed observed a maximum 92% retrieval but the efficiency can be much larger than unity with optimized conditions [17]. This amplification due to the medium inversion is precisely a propagation effect that is not considered in the before mentioned Dicke model. This is a key ingredient to interpret our experimental results. In quantum optics terms, the statistics of the field will be modified: for one photon coming in, more than one will come out. Because the medium is inverted, it acts as a gain medium and modifies the quantum field, and then again reduces the fidelity [31].

Those reasons are three fundamental limitations that we expect in the quantum regime. Even if the 2PE suffers from drastic drawbacks, it should be considered with attention. It is not only a historical example that helps us to understand rephasing phenomena. It has the unique ability to rephase atoms with randomly distributed level shifts, whatever the distribution structure [7]. This a major difference as com-

pared to CRIB [5–8] where the first initial step is a spectral tailoring of the distribution. There is no preparation of the system in the 2PE. The feat performed by the CRIB protocol is its capability to produce a rephasing of the coherence without any population inversion. As a consequence the equations of the 2PE [Eq. (7)] and the CRIB [32] are remarkably similar except that a minus sign accounts for the population inversion in the propagation equation. One can finally wonder if an optical manipulation would achieve a rephasing in the ground state as the CRIB does. This is *a priori* not possible because even a complex optical sequence will be decomposed with rotations on the Bloch sphere; on contrary the CRIB protocol can be interpreted as a planar symmetry (detuning sign reversal). These two are then intrinsically and fundamentally different.

We have here listed the limitations of the 2PE when considered as a potential quantum storage protocol. We pointed out the pulse deformation that can be a technical issue when using strong pulse. The two other limitations are directly and fundamentally related to the medium inversion induced by the optical rephasing operation. On one side the spontaneous emission will produce a noise comparable to the retrieved signal and then deteriorate the storage fidelity. On the other side the inversion will make the medium amplifying, which mainly explains the large predicted and observed efficiency. A larger than one efficiency is also associated with a fidelity reduction for quantum fields. In that sense the 2PE is not a good quantum storage protocol.

V. CONCLUSION

In this paper, we study the 2PE within the context of quantum storage. In this framework, we experimentally observe large efficiencies that are well explained by our simple model and validate our interpretation. Our calculations are based on a physical analysis of this specific situation. The experimental setup has been devised to verify the underlying assumptions of the model. In 2PE, rephasing goes along with population inversion. This is a crucial ingredient of this protocol. The emitted echo is then widely amplified and can be stronger than the incoming signal. We have observed this effect. We finally conclude by studying the potential extension of this work at low light level. We have pointed out the inherent limitations of the process. Based on this analysis the 2PE does not seem to be suitable for quantum storage applications.

By clarifying the physics involved in the very well-known two-pulse photon echo, we more generally tackle the problem of using strong light pulses for rephasing purposes. Our study should then be considered as a tool for the conception of new quantum storage protocols.

ACKNOWLEDGMENTS

We would like to thank S. A. Moiseev for discussions, and Y. Rostovtsev and Z. Sariyanni for providing Ref. [4].

- [1] N. Carlson, L. Rothberg, A. Yodh, W. Babbitt, and T. Mossberg, *Opt. Lett.* **8**, 483 (1983).
- [2] W. R. Babbitt and J. A. Bell, *Appl. Opt.* **33**, 1538 (1994).
- [3] N. A. Kurnit, I. D. Abella, and S. R. Hartmann, *Phys. Rev. Lett.* **13**, 567 (1964).
- [4] Y. Rostovtsev, Z. Sariyanni, and M. O. Scully, *Laser Phys.* **12**, 58 (2002).
- [5] M. Nilsson and S. Kröll, *Opt. Commun.* **247**, 393 (2005).
- [6] A. L. Alexander, J. J. Longdell, M. J. Sellars, and N. B. Manson, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 043602 (2006).
- [7] B. Kraus, W. Tittel, N. Gisin, M. Nilsson, S. Kroll, and J. I. Cirac, *Phys. Rev. A* **73**, 020302(R) (2006).
- [8] G. Hétet, J. J. Longdell, A. L. Alexander, P. K. Lam, and M. J. Sellars, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 023601 (2008).
- [9] M. Afzelius, C. Simon, H. de Riedmatten, and N. Gisin, *Phys. Rev. A*. (to be published), e-print arXiv:0805.4164.
- [10] H. de Riedmatten, M. Afzelius, M. U. Staudt, C. Simon, and N. Gisin, *Nature (London)* **456**, 773 (2008).
- [11] W. Tittel, M. Afzelius, T. Chanelière, R. L. Cone, S. Kröll, S. A. Moiseev, and M. Sellars, *Laser Photonics Rev.* (to be published).
- [12] I. D. Abella, N. A. Kurnit, and S. R. Hartmann, *Phys. Rev.* **141**, 391 (1966).
- [13] E. L. Hahn, N. S. Shiren, and S. L. McCall, *Phys. Lett.* **37A**, 265 (1971).
- [14] M. Azadeh, C. Sjaarda Cornish, W. R. Babbitt, and L. Tsang, *Phys. Rev. A* **57**, 4662 (1998).
- [15] T. Wang, C. Greiner, and T. W. Mossberg, *Opt. Commun.* **153**, 309 (1998).
- [16] T. Wang, C. Greiner, J. R. Bochinski, and T. W. Mossberg, *Phys. Rev. A* **60**, R757 (1999).
- [17] C. Sjaarda Cornish, W. R. Babbitt, and L. Tsang, *Opt. Lett.* **25**, 1276 (2000).
- [18] L. Tsang, C. Sjaarda Cornish, and W. R. Babbitt, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 379 (2003).
- [19] M. D. Crisp, *Phys. Rev. A* **1**, 1604 (1970).
- [20] S. L. McCall and E. L. Hahn, *Phys. Rev. Lett.* **18**, 908 (1967).
- [21] J. Ruggiero, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët, e-print arXiv:0810.0662.
- [22] Y. Sun, G. M. Wang, R. L. Cone, R. W. Equall, and M. J. M. Leask, *Phys. Rev. B* **62**, 15443 (2000).
- [23] V. Crozatier, F. de Seze, L. Haals, F. Bretenaker, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët, *Opt. Commun.* **241**, 203 (2004).
- [24] M. Tian, F. Grelet, I. Lorgeré, J.-P. Galaup, and J.-L. Le Gouët, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 74 (1999).
- [25] V. Crozatier, G. Gorju, J.-L. Le Gouët, F. Bretenaker, and I. Lorgeré, *Opt. Lett.* **31**, 3264 (2006).
- [26] M. Fleischhauer and M. D. Lukin, *Phys. Rev. A* **65**, 022314 (2002).
- [27] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, and P. R. Hemmer, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 023602 (2001).
- [28] S. A. Moiseev and S. Kröll, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 173601 (2001).
- [29] S. A. Moiseev, V. F. Tarasov, and B. S. Ham, *J. Opt. B: Quantum Semiclassical Opt.* **5**, S497 (2003).
- [30] R. H. Dicke, *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
- [31] C. Simon, G. Weihs, and A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2993 (2000).
- [32] N. Sangouard, C. Simon, M. Afzelius, and N. Gisin, *Phys. Rev. A* **75**, 032327 (2007).

CHAPITRE D - ARTICLE SUR LES ÉCHOS DE PHOTON À DEUX
IMPULSIONS ENVISAGÉS COMME PROTOCOLE DE STOCKAGE

Bibliographie

- [1] M. A. Nielsen and I. L. Chuang. *Quantum Computation and Quantum Information*. Cambridge University Press, 2000.
- [2] N. Sangouard, Ch. Simon, H. de Riedmatten, and N. Gisin. Quantum repeaters based on atomic ensembles and linear optics. *ArXiv*, quant-ph/0906.2699v2, 2009.
- [3] L. Mandel and E. Wolf. *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1995.
- [4] S. E. Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu. Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 64(10) :1107, 1990.
- [5] M. Fleischhauer and M. D. Lukin. Dark-state polaritons in electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :5094, 2000.
- [6] M. Fleischhauer and M. D. Lukin. Quantum memory for photons : Dark-state polaritons. *Phys. Rev. A*, 65 :022314, 2002.
- [7] T. Chanelière, D. N. Matsukevich, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories. *Nature*, 438 :833–836, 2005.
- [8] V. Crozatier, G. Gorju, F. Bretenaker, J.L. Le Gouët, I. Lorgeré, and E. Baldit. Photon echoes in an amplifying rare-earth-ion-doped crystal. *Opt. Lett.*, 30 :1288, 2005.
- [9] N. A. Kurnit, I. D. Abella, and S. R. Hartmann. Observation of a photon echo. *Phys. Rev. Lett.*, 13(19) :567, 1964.
- [10] M. O. Scully and Z. Zubairy. *Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1997.
- [11] J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, Ch. Simon, and T. Chanelière. Why the two-pulse photon-echo is not a good quantum memory protocol. *Phys. Rev. A*, 79 :053851, 2009.
- [12] F. Goldfarb, J. Ghosh, M. David, J. Ruggiero, T. Chanelière, J.L. Le Gouët, H. Gilles, R. Ghosh, and F. Bretenaker. EIT and slow light using purely electronic spins in a hot atomic vapor. *EPL (Europhysics Letters)*, 82 :54002, 2008.

BIBLIOGRAPHIE

- [13] T. Lauprêtre, J. Ruggiero, R. Ghosh, F. Bretenaker, and F. Goldfarb. Observation of electromagnetically induced transparency and slow light in the dark state - bright state basis. *Optics Express*, 17(I.22) :19444–19450, 2009.
- [14] J. Ruggiero, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët. Coherent response to optical excitation in a strongly absorbing rare-earth ion-doped crystal. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27 :32, 2010.
- [15] L. Allen and JH Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Courier Dover Publications, 1987.
- [16] L. Tsang, C. Sjaarda Cornish, and W.R. Babbitt. Analytic solutions of the maxwell-bloch equations for high photon-echo efficiency of multiple pulse sequences. *J. Opt. Soc. Am. B*, 20 :379, 2003.
- [17] S. L. McCall and E. L. Hahn. Self-induced transparency by pulsed coherent light. *Phys. Rev. Lett.*, 183(2) :457, 1967.
- [18] Y. Rostovtsev, Z. Sariyanni, and M.O. Scully. Photon echo pulse shape storage. *Laser Phys.*, 12 :58, 2002.
- [19] Ch. Simon, G. Weihs, and A. Zeilinger. Optimal quantum cloning via stimulated emission. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :2993–2996, 2000.
- [20] R. W. Equall, Y. Sun, R. L. Cone, and R. M. Macfarlane. Ultraslow optical dephasing in $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. *Phys. Rev. Lett.*, 72(14) :2179, 1994.
- [21] R. M. Macfarlane. Photon-echo measurements on the trivalent thulium ion. *Opt. Lett.*, 18(22) :1958, 1993.
- [22] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 31(2) :97, 1983.
- [23] Y. Sun, G. M. Wang, R. L. Cone, R. W. Equall, and M. J. M. Leask. Symmetry considerations regarding light propagation and light polarization for coherent interactions with ions in crystals. *Phys. Rev. B*, 62 :15443, Dec 2000.
- [24] S. A. Moiseev and S. Kröll. Complete reconstruction of the quantum state of a single-photon wave packet absorbed by a doppler-broadened transition. *Phys. Rev. Lett.*, 87(17) :173601, 2001.
- [25] L.V. Hau, S. E. Harris, Z. Dutton, and C. H. Behroozi. Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas. *Nature*, 397 :594, 1999.
- [26] D. F. Phillips, A. Fleischhauer, A. Mair, R. L. Walsworth, and M. D. Lukin. Storage of light in atomic vapor. *Phys. Rev. Lett.*, 86(5) :783–786, Jan 2001.

- [27] M. D. Eisaman, A. André, F. Massou, M. Fleischhauer, A. Zibrov, and M. D. Lukin. Electromagnetically induced transparency with tunable single-photon pulses. *Nature*, 438 :837, 2005.
- [28] N. Sangouard, C. Simon, M. Afzelius, and N. Gisin. Analysis of a quantum memory for photons based on controlled reversible inhomogeneous broadening. *Phys. Rev. A*, 75(3) :032327, 2007.
- [29] M. Nilsson and S. Kröll. Solid state quantum memory using complete absorption and re-emission of photons by tailored and externally controlled inhomogeneous absorption profiles. *Opt. Commun.*, 247(4-6) :393, 2005.
- [30] A. L. Alexander, J. J. Longdell, M. J. Sellars, and N. B. Manson. Photon echoes produced by switching electric fields. *Phys. Rev. Lett.*, 96(4) :43602, 2006.
- [31] S. R. Hastings-Simon, M. U. Staudt, M. Afzelius, P. Baldi, D. Jaccard, W. Tittel, and N. Gisin. Controlled Stark shifts in Er^{3+} -doped crystalline and amorphous waveguides for quantum state storage. *Opt. Commun.*, 266(2) :716, 2006.
- [32] M. U. Staudt, S. R. Hastings-Simon, M. Afzelius, D. Jaccard, W. Tittel, and N. Gisin. Investigations of optical coherence properties in an erbium-doped silicate fiber for quantum state storage. *Opt. Commun.*, 266 :720, 2006.
- [33] G. Hétet, J. J. Longdell, A. L. Alexander, P. K. Lam, and M. J. Sellars. Electro-optic quantum memory for light using two-level atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 100(2) :23601, 2008.
- [34] W. Tittel, M. Afzelius, T. Chanelière, R. L. Cone, S. Kröll, S. A. Moiseev, and M. J. Sellars. Photon-echo quantum memory in solid state systems. *Laser & Photon. Rev.*, 4 :244–267, 2010.
- [35] Morgan P. Hedges, Jevon J. Longdell, Yongmin Li, and Matthew J. Sellars. Efficient quantum memory for light. *Nature*, 465 :1052–1056, 2010.
- [36] J. J. Longdell, G. Hétet, P. K. Lam, and M. J. Sellars. Analytic treatment of controlled reversible inhomogeneous broadening quantum memories for light using two-level atoms. *Phys. Rev. A*, 78 :032337, 2008.
- [37] T. Chanelière, J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, W. Tittel, J.-H. Mun, A. Jouini, A. Yoshikawa, G. Boulon, Y. Le Du, Ph. Goldner, F. Beaudoux, J. Vincent, E. Antic-Fidancev, and O. Guillot-Noël. $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ investigated for a quantum light storage application. *Phys. Rev. B*, 77(24) :245127, 2008.
- [38] G. Hétet, J. J. Longdell, M. J. Sellars, P. K. Lam, and B. C. Buchler. Multimodal properties and dynamics of gradient echo quantum memory. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :203601, 2008.

BIBLIOGRAPHIE

- [39] H. de Riedmatten, M. Afzelius, M. U. Staudt, C. Simon, and N. Gisin. A solid-state light-matter interface at the single-photon level. *Nature*, 456 :773–777, 2008.
- [40] T. Mossberg, A. Flusberg, R. Kachru, and S. R. Hartmann. Total scattering cross section for na on he measured by stimulated photon echoes. *Phys. Rev. Lett.*, 42(25) :1665–1669, Jun 1979.
- [41] Wim H. Hesselink and Douwe A. Wiersma. Picosecond photon echoes stimulated from an accumulated grating. *Phys. Rev. Lett.*, 43(27) :1991–1994, Dec 1979.
- [42] W. H Hesselink and D.A. Wiersma. Photon echoes stimulated from an accumulated grating : Theory of generation and detection. *J. Chem. Phys.*, 75 :4192–4197, 1981.
- [43] T. W. Mossberg. Time-domain frequency-selective optical data storage. *Opt. Lett.*, 7(2) :77, 1982.
- [44] T.W. Mossberg. Swept-carrier time-domain optical memory. *Opt. Lett.*, 17 :535–537, 1992.
- [45] H. Lin, T. Wang, G.A. Wilson, and T.W. Mossberg. Experimental demonstration of swept carrier time-domain optical memory. *Opt. Lett.*, 20 :91–93, 1995.
- [46] K.D. Merkel and W.R. Babbitt. Optical coherent transient continuously programmed continuous processor,. *Opt. Lett.*, 24 :172–174, 1999.
- [47] L. Ménager, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, D. Dolfi, and 1245-1247 (2001). Huignard, J.-P. *Opt. Lett.* 26. Demonstration of a radio-frequency spectrum analyzer based on spectral hole burning. *Opt. Lett.*, 26 :1245–1247, 2001.
- [48] V. Lavielle, I Lorgeré, J.-L. Le Gouët, S. Tonda, and D. Dolfi. Wideband versatile radio-frequency spectrum analyzer. *Opt. Lett.*, 28 :384–386, 2003.
- [49] V. Lavielle, F. De Seze, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët. Wideband radio frequency spectrum analyzer : improved design and experimental results. *J. Lumin.*, 107 :75–89, 2004.
- [50] R. Lauro, T. Chanelière, and J. L. Le Gouët. Slow light using spectral hole burning in a Tm^{3+} -doped yttrium-aluminum-garnet crystal. *Phys. Rev. A*, 79(6) :063844, Jun 2009.
- [51] Nicklas Ohlsson, Mattias Nilsson, Stefan Kröll, and R. Krishna Mohan. Long-time-storage mechanism for tm :yag in a magnetic field. *Opt. Lett.*, 28(6) :450–452, 2003.
- [52] M. Bonarota, J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, and T. Chanelière. Efficiency optimization for atomic frequency comb storage. *Phys. Rev. A*, 81 :033803, 2010.
- [53] J. W. Ekin. *Experimental Techniques for Low Temperature Measurements*. Oxford University Press, 2006.

- [54] Anne Louchet. *Manipulation optique d'une cohérence de spin nucléaire dans l'ion thulium en matrice cristalline*. PhD thesis, Université Paris XI, Laboratoire Aimé Cotton, 2008.
- [55] T. Chanelière, J. Ruggiero, M. Bonarota, M. Afzelius, and J.-L. Le Gouët. Efficient light storage in a crystal using an atomic frequency comb. *N. J. Phys.*, 12 :023025, 2010.
- [56] A. Louchet, J. S. Habib, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Goldfarb, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and Ph. Goldner. Branching ratio measurement of a Lambda system in Tm³⁺ :YAG under a magnetic field. *Phys. Rev. B*, 75(3) :035131, 2007.
- [57] G Gorju, A Louchet, D Paboeuf, F Bretenaker, F Goldfarb, T Chanelière, I Lorgeré, J-L Le Gouët, O Guillot-Noël, and Ph Goldner. Stimulated optical pumping in a tm :yag crystal. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 19(38) :386226, 2007.
- [58] G. Liu and B. Jacquier. *Spectroscopic properties of rare earths in optical materials*. Springer Verlag, 2005.
- [59] M. Afzelius, C. Simon, H. de Riedmatten, and N. Gisin. Multimode quantum memory based on atomic frequency combs. *Phys. Rev. A*, 79 :052329, 2009.
- [60] K. Hammerer, A.S. Sørensen, and E.S. Polzik. Quantum interface between light and atomic ensembles. *Reviews of Modern Physics*, 82(2) :1041–1093, 2010.
- [61] R. Lauro, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët. Spectral hole burning for stopping light. *Phys. Rev. A*, 79(5) :053801, May 2009.
- [62] T. Coudreau, F. Grosshans, S. Guibal, and L. Guidoni. Feasibility of a quantum memory for continuous variables based on trapped ions : from generic criteria to practical implementation. *J. of physics. B. Atomic, molecular and optical physics*, 40 :413–426, 2007.
- [63] M. Afzelius, I. Usmani, A. Amari, B. Lauritzen, A. Walther, C. Simon, N. Sangouard, J. Minár, H. de Riedmatten, N. Gisin, and S. Kröll. Demonstration of atomic frequency comb memory for light with spin-wave storage. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :040503, 2010.
- [64] M. Bonarota. *Vers le stockage quantique de la lumière dans les ions de terre rare en matrice cristalline*. Master's thesis, M2 Mécanique Quantique - Laboratoire Aimé Cotton, 2009.