



Traiter l'information avec des processeurs atomiques

Thierry Chaneliere

► To cite this version:

Thierry Chaneliere. Traiter l'information avec des processeurs atomiques. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2013. tel-00912547

HAL Id: tel-00912547

<https://theses.hal.science/tel-00912547>

Submitted on 2 Dec 2013

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.

Mémoire

présenté pour obtenir

L'HABILITATION À DIRIGER DES
RECHERCHES DE L'UNIVERSITÉ
PARIS-SUD

par

Thierry CHANELIÈRE

Traiter l'information avec des processeurs atomiques

Soutenue le 10 juin 2013 devant la Commission d'examen:

	Hugues	DE RIEDMATTEN
	Bernard	JUSSERAND
	Christian	MINIATURA
Rapporteur	Jean-Philippe	POIZAT
	François	RAMAZ
Rapporteur	Christoph I.	WESTBROOK

Rapporteur extérieur:

Wm. Randall BABBITT

Table des matières

I	Introduction	7
1	Synthèse de mon activité scientifique	8
1.1	Quelques repères	8
1.2	Thèse (2001-2004)	8
1.3	Postdoctorat (2004-2006)	9
1.4	Chargé de recherche (2006-présent)	10
2	Choix pour la rédaction du mémoire	11
3	Perspectives de recherche	12
II	Revue des protocoles de stockage quantique	14
4	Protocoles de stockage dispersif	16
4.1	Lumière « lente » dans une fenêtre de transparence	17
4.2	De la lumière « lente » à la lumière « arrêtée » : trois protocoles	20
4.3	Protocole Raman hors résonance	30
5	Protocoles basés sur l'écho de photon	34
5.1	L'écho à deux impulsions	35
5.2	Le protocole Controlled Reversible Inhomogeneous Broadening	40
5.3	Revival Of Silenced Echo : le retour de l'écho de photon	45
6	Le protocole Atomic Frequency Comb, l'inclassable ?	49
6.1	L'AFC, le fils prodige de l'écho à trois impulsions	50
6.2	Optimisation de l'efficacité	51
6.3	Expériences d'AFC dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	54
6.4	L'AFC est un protocole dispersif !	55
7	Synthèse et classification	56
7.1	Approche statique et contrôle dynamique	56
7.2	Où est enregistrée l'information ?	57

7.3	Tableau récapitulatif	57
8	Conclusion - Perspectives	58
8.1	Conclusion	58
8.2	Perspectives	58
III	Traitement classique de l'information sur porteuse optique : un sujet d'avenir !	60
9	Intérêt des cristaux dopés terre rare	61
10	Tomographie optique modulée par ultrason	62
10.1	Principe	62
10.2	Filtrage spectral à large étendue dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	63
10.3	Étude de faisabilité dans le cadre de l'UOT	65
11	Asservissement laser sur un trou spectral	67
12	Cristaux dopés terre rare et vibrations	69
12.1	Les vibrations, source de perplexité	69
12.2	Vibrations et spectroscopie	70
IV	Comprendre les matériaux et leur interaction avec la lumière	73
13	$\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$, une étude emblématique de matériau	74
13.1	Orientation du cristal sous champ magnétique	76
13.2	Etude de l'effet Stark	78
13.3	Conclusion	81
14	Propagation cohérente d'impulsions fortes	81
14.1	Propagation des impulsions π	82
14.2	Impulsions Sécante Hyperbolique Complexe	86
14.3	Impulsions fortes dans une cavité active	90
V	Ouverture et perspectives générales	96

15 L'avenir du ROSE	97
16 Utilisation possible d'une cavité de finesse moyenne	97
17 Applications nouvelles pour le hole-burning	98
VI Annexes	101
A Rappel des équations de propagation	102
A.1 Équations de Bloch	102
A.2 Équation de Maxwell	102
A.3 Propagation en régime perturbatif	103
A.4 Propagation cohérente : lois de conservation	104
B Manipulation de dipôles dans une cavité de type Gires-Tournois	106
B.1 Équations du GTI actif	106
B.2 Réponse cohérente en régime perturbatif - Cavité matchée	107
B.3 Théorème de l'aire intracavité	107
VII Articles	108
C Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories	109
D Quantum Memory with a controlled homogeneous splitting	114
E Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol	128
F Revival of silenced echo and quantum memory for light	137
G Efficiency optimization for atomic frequency comb storage	150
H $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ investigated for a quantum light storage application	161
I Coherent response to optical excitation in a strongly absorbing rare-earth ion-doped crystal	169

VIII	Curriculum vitae	176
	Références	188

Délaissant les grands axes
J'ai pris la contre-allée

Aucun Express
ALAIN BASHUNG

Première partie

Introduction

Sommaire

1	Synthèse de mon activité scientifique	8
1.1	Quelques repères	8
1.2	Thèse (2001-2004)	8
1.3	Postdoctorat (2004-2006)	9
1.4	Chargé de recherche (2006-présent)	10
2	Choix pour la rédaction du mémoire	11
3	Perspectives de recherche	12

En guise d'introduction, je commencerai par présenter succinctement mon activité de recherche depuis le début ma thèse en 2001 jusqu'à mon travail actuel en tant que chargé de recherche au CNRS.

Pour la rédaction du mémoire d'habilitation, j'ai fait le choix de présenter une partie de mes activités passées et actuelles. Je justifierai cette construction dont l'objectif est de donner une cohérence au manuscrit.

Je n'ai pas fait de partie spécifique pour exposer les perspectives futures de mon activité. L'aspect prospectif est en réalité disséminé dans le mémoire. Cela à l'avantage de raccrocher de façon directe les perspectives avec le travail en cours. J'ai bien conscience que cela rend plus difficile la tâche des rapporteurs et du jury qui peuvent préférer une organisation chronologique du mémoire plus conforme à l'esprit de l'examen. J'indiquerai donc en introduction les différents points d'entrée dans le manuscrit qui concernent la prospective.

1 Synthèse de mon activité scientifique

1.1 Quelques repères

- **2006 - présent** - Chargé de recherche CNRS :
Laboratoire Aimé Cotton, Orsay
Utilisation des cristaux dopés aux ions de terre-rare pour le traitement quantique et classique de l'information
- **2004 - 2006** - Postdoctorat (groupe : A. Kuzmich) :
Georgia Institute of Technology, Atlanta GA - USA
Utilisation d'ensembles atomiques pour l'optique quantique.
- **2001 - 2004** - Thèse (directeur : R. Kaiser) :
Institut Non Linéaire de Nice, Valbonne
Diffusion multiple cohérente avec atomes froids de strontium : Effet de la saturation sur la rétrodiffusion cohérente - Piège magnéto-optique sur raie étroite.

1.2 Thèse (2001-2004)

Mon travail de thèse (2001-2004) était centré sur l'étude des effets de la diffusion multiple cohérente de la lumière dans un nuage de strontium refroidi par laser.

La diffusion multiple cohérente - et plus généralement le phénomène de localisation d'ondes lumineuses dans un milieu atomique désordonné - résulte de l'interférence entre les chemins suivis par la lumière. Elle se réduit souvent à une modification de la constante de diffusion (localisation faible). À l'extrême, c'est-à-dire à forte densité (10^{14} atomes/cm³ pour le nuage considéré), on peut assister à une modification drastique de la propagation puisque la constante de diffusion devient nulle. On entre alors dans le régime de localisation forte (ou d'Anderson) qui survient lorsque le libre parcours moyen de diffusion est de l'ordre de la longueur d'onde optique. Ce phénomène, bien connu pour la propagation des électrons (localisation d'Anderson), n'a jamais été observé pour la propagation de la lumière à des longueurs d'onde optiques.

L'utilisation d'atomes froids en tant que milieu diffusant semble bien adaptée à une telle étude. D'une part, on s'affranchit du déphasage Doppler. D'autre part les caractéristiques du champ diffusé par un atome sont bien connues. L'atome choisi pour cette étude est le strontium 88 qui, sur la transition $^1S_0 \rightarrow ^1P_1$ (461 nm), se comporte comme un diffuseur Rayleigh « idéal ». Un point techniquement délicat est la réalisation d'un laser bleu à 461 nm qui servira aussi au piégeage et au refroidissement [Klappauf2004]. La densité obtenue est alors de 10^{10} atomes/cm³ typiquement : on est encore dans un régime de localisation faible.

J'ai en particulier mesuré le contraste des interférences en régime de saturation à partir de l'observation du phénomène de rétro-diffusion cohérente [Wilkowski2004]. Cette analyse apparaît comme un préalable à l'étude des effets de localisation forte puisqu'à forte densité on s'attend à voir émerger des surintensités localement saturantes. J'ai pu observer une décroissance expérimentale du contraste des interférences lorsqu'on augmente la saturation [Chanelière2004].

Le montage expérimental ainsi disponible m'a par ailleurs permis d'étudier en détail le refroidissement Doppler sur la transition $^1S_0 \rightarrow ^1P_1$ [Chanelière2005b]. Même si la théorie Doppler est ancienne, les vérifications expérimentales sont rares. J'ai pu mettre en évidence et interpréter un mécanisme de chauffage supplémentaire qui avait aussi été observé par d'autres groupes. Il est par ailleurs important de « pousser » le refroidissement sur cette transition en vue de transférer le nuage dans un piège sur la raie d'intercombinaison.

Afin d'augmenter la densité des diffuseurs et ainsi de se rapprocher du régime de localisation forte, il est en effet possible d'exploiter la raie $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ (689 nm) du strontium. Le piégeage sur une transition étroite est délicat. Il requière la réalisation d'un laser ultra-stable qui doit permettre d'atteindre une densité 10^{12} atomes/cm³ et de faire un premier pas vers le régime de localisation forte. J'ai en particulier étudié l'étape de transfert à partir du piège sur la transition bleue afin de mettre en évidence les paramètres critiques qui gouvernent le piégeage sur la raie d'intercombinaison. Le taux de transfert obtenu est de 50% ce qui est très satisfaisant.

1.3 Postdoctorat (2004-2006)

Tout en me reposant sur mon expérience en interaction matière-rayonnement avec les milieux modèles que représentent les atomes froids, j'ai réorienté mon activité vers l'optique quantique en postdoctorat.

L'échange cohérent d'information quantique entre le champ lumineux et un milieu matériel est actuellement un enjeu majeur du domaine de l'optique quantique. L'utilisation d'ensembles atomiques dans ce but semble une alternative intéressante à l'interaction avec une particule unique isolée dans une cavité à haute finesse. Le domaine des ensembles atomiques a en effet réalisé au début des années 2000 des progrès rapides et remarquables en bénéficiant à la fois d'une meilleure compréhension des phénomènes et d'une relative simplicité expérimentale.

Les deux voies élémentaires de cette interaction ont été explorées : on peut utiliser un ensemble atomique comme une source de photons d'une part ou le considérer comme une mémoire où l'on viendra enregistrer de l'information quantique d'autre part. Je

décrirai ma contribution dans l'une et l'autre voie dans les deux paragraphes à suivre. Pour ces expériences, on utilise un nuage atomique refroidi optiquement épais (piège magnéto-optique de rubidium) dont on pilote l'état du spin collectif par les transitions Raman d'un système en Λ .

Lorsque l'ensemble est considéré comme source, par transition Raman spontanée, on génère des photons Stokes dont l'émission est corrélée avec l'excitation du spin collectif comme cela a été démontré en 2003 par A. Kuzmich *et al.* Plus particulièrement, j'ai étudié l'intrication de l'état de polarisation du photon Stokes avec celui du spin collectif [Matsukevich2005]. L'étude des corrélations met en évidence une violation des inégalités de Bell. Deux états de polarisation orthogonaux du photon et du spin collectif définissent alors les qubits photonique et atomique respectivement. Cette expérience est dans la droite ligne des réalisations précédentes, elle traduit cependant une bonne maîtrise du processus d'émission et permet de définir un qubit atomique robuste qui peut maintenant être utilisé dans les protocoles d'information quantique.

La réalisation du processus inverse où l'on vient enregistrer un photon dans un milieu matériel est un fait véritablement marquant. Pour cette expérience, un ensemble source délivre des photons uniques à la demande. J'ai ensuite appliqué la technique de lumière « arrêtée » pour les stocker dans un second ensemble mémoire [Chanelière2005a]. On contrôle la transparence de celui-ci au moyen d'un champ de couplage (transparence induite électro-magnétiquement) ce qui assure le transfert de l'état du champ lumineux en excitation du spin collectif. En venant relire la mémoire, on vérifie le caractère quantique du stockage (photon unique) en mesurant le paramètre d'anticorrélation du champ (cohérence du second-ordre). Les expériences de lumière « arrêtée » se sont multipliées récemment et font l'objet d'une littérature abondante depuis la proposition originale de M. Lukin. Cependant aucune démonstration n'avait été réalisée dans le régime quantique et a fortiori avec des photons uniques.

J'ai pu finalement exploiter la richesse de notre système constitué de deux ensembles en montrant l'intrication de deux qubits atomiques distants de plusieurs mètres [Matsukevich2006]. Pour ce faire, le premier ensemble émet un photon dont l'état de polarisation est intriqué avec la polarisation du spin collectif. Les deux polarisations possibles du photon émis sont ensuite stockées dans un second ensemble mémoire ce qui assure la conversion du qubit photonique (polarisation) en qubit atomique (polarisation du spin collectif). Il s'agissait ici de mettre bout à bout les deux modules élémentaires décrits dans les paragraphes précédents : source de photons intriqués – stockage de photons uniques. On vérifie l'intrication des deux qubits atomiques par des mesures de corrélations en violation avec les inégalités de Bell. Cette expérience diffère du stockage de photon unique puisque l'on a enregistré cette fois deux polarisations orthogonales en conservant la cohérence quantique (qubit photonique).

1.4 Chargé de recherche (2006-présent)

Les ions de terre rare ont des propriétés remarquables qui les font ressembler aux atomes froids. Outre qu'ils sont immobiles une fois inclus comme impuretés dans des solides transparents, ils gardent des propriétés exceptionnelles de cohérence à basse température. J'ai proposé de les étudier comme support de mémoire quantique en rentrant au CNRS. J'ai pu me reposer sur l'expérience acquise en optique quantique lors de mon

postdoc mais en abandonnant les vapeurs.

Transposer telles quelles mes connaissances acquises sur les atomes-froids pour les adapter aux cristaux dopés était particulièrement tentant. Ce n'est pas forcément pertinent tant les ions de terre rare ont des propriétés spécifiques comme une grande finesse de la transition optique ($\sim$ kHz) associé à un fort élargissement inhomogène ($\sim$ GHz). Sans préjuger du caractère sympathique ou antipathique des ces propriétés, il est préférable de les prendre telles quelles comme point de départ de la réflexion. Nous avons avec ce point de vue tâché d'exploiter au mieux les propriétés intrinsèques pour proposer des protocoles de stockage quantique bien adaptés [Lauro2009b, Ruggiero2009, Sangouard2010, Damon2011, Bonarota2012, Hétet2012]. Cette réflexion et sa mise en œuvre sont une partie importante de mon activité que je vais largement développer dans ce mémoire.

Avec comme objectif de faire réaliser aux cristaux des fonctions optiques, il est absolument indispensable de mener une activité de fond sur les matériaux mêmes. Nous nous sommes spécialisés sur le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ en repoussant ces performances à partir d'études de plus en plus fines impliquant optique puis RF pour l'excitation du spin [Alexander2008, Lauro2011, Pascual-Winter2012a, Pascual-Winter2012b]. Nous ne négligeons cependant pas des nouveaux matériaux largement stimulés par la collaboration quasi-quotidienne avec le groupe de Ph. Goldner & A. Ferrier à l'ENSCP [Beaudoux2011, Goldner2009] Je parlerai plus spécifiquement de notre travail sur $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ [Chanelière2008] dans le manuscrit.

Mon projet principal reste largement orienté vers les mémoires quantiques. Je me suis cependant impliqué progressivement dans le second volet de l'activité du groupe c-à-d le traitement classique avec ces mêmes cristaux. Cette évolution naturelle a malheureusement été précipitée par le disparition soudaine d'Ivan Lorgeré en 2009. Il s'agit de l'activité historique du groupe tournée vers les applications en traitement du signal sur porteuse optique. Le projet d'analyseur spectral en cours de transfert technologique avec Thales-TRT est emblématique. L'objectif du côté fondamental est de proposer et mettre en œuvre des nouvelles fonctions comme par exemple la mise en forme arbitraire [Damon2010]. Le projet est menée très activement par Anne Louchet-Chauvet à l'heure actuelle. Je parlerai peu de ce qui a été fait ces dernières années là-dessus. Cette discussion m'amène à la présentation du mémoire et des différents choix que j'ai pu faire lors de sa rédaction.

2 Choix pour la rédaction du mémoire

J'ai choisi pour la rédaction de privilégier mon projet au CNRS. Le mémoire englobe la thématique de mon postdoc puisque l'ensemble se place dans le contexte des mémoires quantiques. Je ne parlerai donc pas de ma thèse. J'ai vu pourtant resurgir des problématiques abordées à l'époque lors de l'étude récente d'émission d'écho de photon dans un milieu diffusant dopés avec des terres rares [Beaudoux2011]. Il s'agit d'un travail conceptuellement très proche de mon travail de thèse qui reste une voie de recherche possible pour l'avenir. La collaboration récente avec D. Wilkowski [Hétet2012] est aussi un pont entre mes activités passées et présentes.

Le « gros » du manuscrit est une revue des protocoles de stockage quantique (partie

II). J'essaye ici une analyse thématique non-chronologique même si je couvre finalement mes différentes contributions depuis mon postdoc jusqu'à la période récente.

La partie suivante est plus prospective et s'intéresse aux possibilités nouvelles de traitement classique avec des cristaux dopés (partie III). Je ne ferai pas de synthèse des activités du groupe car ce projet est porté par Anne Louchet-Chauvet. Je présenterai ici deux projets nouveaux qui sont en train de prendre forme dans le groupe.

La scission quantique-classique que j'utilise pour la construction de mon plan fait figure de dogme à l'heure actuelle. On perd un peu de vue ce qu'elle recouvre. Afin d'être concret, on peut se poser la question de la différence entre mémoire quantique et classique pour la lumière. La mémorisation est une fonction particulière du traitement de l'information. Dans les deux cas, on stocke de la lumière? Certes, mais dans un cas, on souhaite conserver les propriétés quantiques (état de Fock par exemple). Dans l'autre, on cherche plutôt à garder la forme de l'impulsion lumineuse par exemple. À titre d'illustration, une mémoire qui enregistre une impulsion et la délivre en l'amplifiant est une excellente mémoire classique mais une piètre mémoire quantique (ni le nombre moyen de photons ni la statistique du champ ne sont conservés). Même si la finalité peut être la même - stocker de la lumière - les contraintes sont différentes, d'où la distinction dans le manuscrit.

La partie IV qui suit est plus transversale. Nous menons en effet une activité de fond sur les matériaux d'un côté et sur l'aspect fondamental de leur interaction avec le rayonnement d'un autre. Ce travail sous-tend en réalité l'ensemble de l'activité. J'en parlerai en 13 avec une étude spécifique de $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$. Cette étude est importante à mes yeux car elle fût une sorte de ticket d'entrée dans la communauté des terres rares, matériaux nouveaux pour moi à l'époque. Je me souviens aussi des bons moments passés alors avec Olivier Guillot-Noël qui nous a quitté brutalement et avec qui j'ai eu le plaisir de collaborer. Je détaillerai ensuite une série d'études de propagation cohérente en 14 qui représente un travail de fond sur la compréhension de l'interaction matière-rayonnement dans nos milieux.

Pour conclure sur un touche plus légère, je ferai remarquer au lecteur féru des nouvelles techniques de management que le mémoire a une structure semi-matricielle. Les deux premières parties II et III sont thématiques (horizontales) avec un balancement traitement quantique - classique. La partie suivante IV est disciplinaire (verticale) avec d'une part l'étude des matériaux et d'autre part de leur interaction avec le rayonnement¹.

3 Perspectives de recherche

Comme je l'ai dit, je n'ai pas fait de partie proprement dit mais j'ai préféré disséminer les perspectives d'évolution pour que le lien avec l'activité passée apparaisse clairement. J'en résume les différents points pour guider le lecteur dans son analyse.

Concernant le stockage quantique, nous nous investissons très fortement sur le protocole ROSE qui sera détaillé en 5.3. Cela se justifie d'une part parce qu'il a été proposé

1. On peut aussi remplacer horizontale par verticale et inversement ce qui revient au même mais reste semi-matricielle.

dans notre groupe. Et d'autre part car il fait sauter le verrou important que constituait la préparation de l'échantillon par pompage optique. Il semble donc applicable directement dans $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ aux longueurs d'onde utilisées en télécommunications. Nous y travaillons actuellement.

J'aborde dans ce même contexte et quasiment à la cantonade la propagation cohérente d'impulsion dans une cavité en 14.3. Il s'agit d'une voie très intéressante. On peut en effet imaginer transposer les différents protocoles présentés en II dans une cavité de finesse moyenne avec un milieu faiblement absorbant. On peut alors éviter les problèmes de préparation spectrale par pompage optique qui sont souvent dramatiques pour des milieux optiquement épais. Tout reste à faire dans cette direction. Je proposerai quelques pistes de réflexion en conclusion.

Concernant les aspects de traitement classique, la partie III est très prospective car elle regroupe des projets naissants pour lesquels peu a été fait expérimentalement. L'analyse en est cependant suffisamment mature pour envisager leur démarrage dès maintenant.

J'espère que ce paragraphe suffira à guider le lecteur. Je reprendrai ces perspectives en conclusion à partir des éléments chiffrés détaillés dans le mémoire.

Deuxième partie

Revue des protocoles de stockage quantique

Sommaire

4	Protocoles de stockage dispersif	16
4.1	Lumière « lente » dans une fenêtre de transparence	17
4.1.1	Lumière « lente » dans des systèmes à deux niveaux	17
4.1.2	Compression spatiale de l'impulsion et conservation de l'énergie	18
4.2	De la lumière « lente » à la lumière « arrêtée » : trois protocoles . .	20
4.2.1	Lumière « arrêtée » par transparence induite électromagnéti- quement	20
4.2.2	Lumière « arrêtée » par hole-burning spectral	25
4.2.3	Lumière « arrêtée » par contrôle dynamique du désaccord . .	27
4.2.4	Conclusion	29
4.3	Protocole Raman hors résonance	30
4.3.1	Réponse retardée impulsionnelle d'un système à deux niveaux.	30
4.3.2	Protocole Raman	32
4.3.3	Conclusion	33
5	Protocoles basés sur l'écho de photon	34
5.1	L'écho à deux impulsions	35
5.1.1	Efficacité de l'écho	36
5.1.2	Analyse	37
5.1.3	Expériences	38
5.2	Le protocole Controlled Reversible Inhomogeneous Broadening . . .	40
5.2.1	Le CRIB transverse	41
5.2.2	Le CRIB longitudinal ou Gradient Echo Memory	43
5.2.3	Le CRIB était presque parfait	44
5.3	Revival Of Silenced Echo : le retour de l'écho de photon	45
5.3.1	Principe du ROSE	45
5.3.2	Réalisations expérimentales du ROSE	47
5.3.3	Étude du bruit	48
6	Le protocole Atomic Frequency Comb, l'inclassable ?	49
6.1	L'AFC, le fils prodige de l'écho à trois impulsions	50
6.2	Optimisation de l'efficacité	51
6.3	Expériences d'AFC dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	54
6.4	L'AFC est un protocole dispersif!	55
7	Synthèse et classification	56
7.1	Approche statique et contrôle dynamique	56
7.2	Où est enregistrée l'information ?	57

7.3	Tableau récapitulatif	57
8	Conclusion - Perspectives	58
8.1	Conclusion	58
8.2	Perspectives	58

Les objectifs de ce chapitre sont multiples. Je passerai en effet en revue les différents protocoles de stockage de lumière dans des ensembles atomiques. Il s'agit d'un objectif en soi puisque dans le foisonnement récent de nouveaux protocoles, il est parfois difficile de s'y retrouver. Il permet par ailleurs de replacer mon activité de recherche dans le contexte en présentant mes différentes contributions. Enfin, et c'est le point qui me tient le plus à cœur, c'est l'aboutissement d'une réflexion personnelle sur les différents types de protocoles. Je développe ici une analyse des différents protocoles pour savoir ce qu'ils ont en commun ou ce qui les oppose. Je conclurai par une classification.

Je prendrai un point de vue inhabituel. Mon analyse démarre systématiquement en considérant les atomes comme des systèmes à deux niveaux. Ce choix revêt un aspect pédagogique certain mais peut-être déroutant pour ceux qui connaissent les expériences de « lumière arrêtée » basée sur la transparence induite électromagnétiquement (EIT en anglais²). L'EIT est le protocole phare du domaine, leader incontesté du marché des mémoires quantiques, il est le premier historiquement. L'effet de « lumière lente » puis de « lumière arrêtée » est obtenu dans un ensemble de systèmes à trois niveaux. Je montrerai qu'il est possible d'obtenir ce même type d'effet avec des atomes à deux niveaux. C'est un enjeu plus conceptuel que pratique tant l'EIT dans des systèmes à trois niveaux est bien adaptée aux vapeurs atomiques. Cette adéquation est à la source du succès de l'EIT.

Je commencerai donc par décrire l'idée de « lumière lente » de façon très générale. Il s'agit ici de clarifier ce concept et de voir surtout comment il peut se prolonger en protocole de stockage. À partir de son aspect archétypal et historique, il me sera alors possible de généraliser en montrant que plusieurs protocoles utilisent des effets de dispersion dont la lumière « lente » n'est qu'un cas particulier. J'utilise donc le qualificatif de « dispersif » pour ces protocoles qui représente la première des deux grandes catégories. La seconde englobe les protocoles basés sur l'écho de photon. Je traiterai ces deux parties indépendamment. Je considérerai ensuite à part le protocole Atomic Frequency Comb (AFC). Il revêt pour moi une importance particulière d'une part, car nous l'avons largement étudié dans le groupe, mais surtout parce qu'il est à mon avis un faux-ami de l'écho de photon. Il s'en inspire clairement, mais je le classerai finalement dans les protocoles dispersifs. Je terminerai par une synthèse qui justifie ma classification en deux catégories.

4 Protocoles de stockage dispersif

Avant de rentrer dans le vif du sujet, il est important de définir ce que j'entends par « dispersif ». En effet, dans la mesure où on interagit avec un système atomique, que l'on soit à résonance ou hors résonance, la susceptibilité se décompose en une partie réelle et une partie imaginaire. On associe la dispersion à la partie réelle autrement dit l'indice de réfraction. La partie imaginaire définit l'absorption. Les deux sont liées par les relations de Kramers-Kronig qui sont l'expression dans le domaine spectral de la causalité. Absorption et dispersion sont donc reliées, l'une ne va pas sans l'autre. On considère cependant que loin des résonances atomiques, les effets de dispersion dominent. On parle alors d'un milieu dispersif où on ne considère que l'indice. Ceci est parfaitement

2. http://en.wikipedia.org/wiki/Electromagnetically_induced_transparency

justifié si l'on décrit les résonances par des lorentziennes complexes (modèle de Lorentz-Lorenz) : la dispersion décroît hors de résonance comme l'inverse du désaccord et domine alors l'absorption qui décroît comme son carré. Je considère donc ici des interactions hors résonances, pour moi synonyme d'effets dispersifs. Ceci se justifie bien dans le cas d'école que constitue la lumière « lente » en s'intéressant à la vitesse de groupe dans le milieu. Je commencerai donc par cette situation, en décrivant d'une part la dispersion qui produit la lumière « lente » mais aussi l'étape indispensable au stockage qui permet d'arrêter complètement l'impulsion. Cette analyse sera l'occasion de présenter trois protocoles qui permettent de passer de la situation de lumière « lente » à celle de lumière « arrêtée ». Je conclurai en décrivant le protocole Raman hors résonance qui rentre à mon avis dans le cadre des protocoles dispersifs.

4.1 Lumière « lente » dans une fenêtre de transparence

4.1.1 Lumière « lente » dans des systèmes à deux niveaux

Je considère ici un système élémentaire constitué de systèmes à deux niveaux pour observer de la lumière « lente ». Comme je l'ai dit, on cherche à se placer hors résonance d'un système atomique. On choisit simplement de se désaccorder de Δ_0 d'une raie homogène de largeur γ . Pour rendre la situation symétrique dans le domaine spectral, je préfère considérer deux raies homogènes de fréquences Δ_0 et $-\Delta_0$, le spectre de l'impulsion incidente étant contenu dans cette fenêtre de transparence. La situation est résumée par la figure 1.

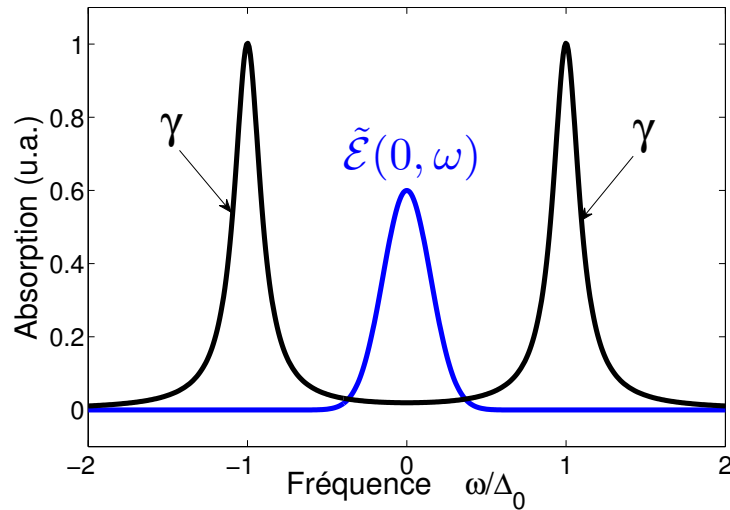


FIGURE 1 – Situation élémentaire pour observer de la lumière « lente ». On définit une fenêtre de transparence bornée par deux raies homogènes de largeur γ situées en Δ_0 et $-\Delta_0$. On considère que le spectre de l'impulsion incidente $\tilde{\mathcal{E}}(0, \omega)$ est contenu dans cette fenêtre. En pratique, on adapte le plus souvent la bande passante aux caractéristiques du système en choisissant la durée de l'impulsion.

Il n'est pas difficile de calculer l'expression de la vitesse de groupe dans ce cas. Dans le régime perturbatif, la propagation du champ est décrite par le système de Bloch-

Maxwell (voir annexe A.3.1). Dans l'eq. 49, la distribution inhomogène prend la forme de deux pics de Dirac ($g(\Delta) = \pi\gamma(\delta_{-\Delta_0} + \delta_{\Delta_0})$) ou plus directement on écrit le terme source (eq. 49) comme la somme des émissions des dipôles décrits par leur polarisation complexe $\tilde{r}(\Delta_0, z, \omega) + \tilde{r}(-\Delta_0, z, \omega)$:

$$\frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{\partial z} + i\frac{\omega}{c}\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) = -\frac{i\alpha}{2}\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) \left(\frac{\gamma}{i\gamma - (\omega - \Delta_0)} + \frac{\gamma}{i\gamma - (\omega + \Delta_0)} \right) \quad (1)$$

Je considère être suffisamment hors de résonance pour pouvoir négliger l'absorption résiduelle. La relation de dispersion est donnée ensuite par un développement au premier ordre en ω/Δ_0

$$\frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{\partial z} + i\frac{\omega}{c}\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) \simeq -\frac{i\alpha}{2} \frac{\gamma\omega}{\Delta_0^2} \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) \quad (2)$$

L'enveloppe de l'impulsion se déplace à la vitesse de groupe v_g que l'on identifie à

$$\frac{1}{v_g} = \frac{1}{c} + \frac{\alpha\gamma}{\Delta_0^2}. \quad (3)$$

puisque l'équation de propagation au premier ordre devient dans le domaine temporel

$$\frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{\partial t} = 0 \quad (4)$$

Dans la situation où l'absorption est suffisamment importante, on peut obtenir $\frac{\alpha\gamma}{\Delta_0^2} \gg \frac{1}{c}$ autrement dit $v_g \ll c$. On définit alors le retard de groupe, effet net du ralentissement de l'impulsion.

$$T_g = \alpha L \frac{\gamma}{\Delta_0^2} \quad (5)$$

Ce modèle rudimentaire permet d'appréhender la physique du stockage par lumière « lente ». Pour cela, il est important de comprendre en profondeur la propagation en gardant un œil sur la partie atomique du système.

4.1.2 Compression spatiale de l'impulsion et conservation de l'énergie

Lorsque l'impulsion se propage dans le milieu, elle subit une compression spatiale par définition de la vitesse de groupe. L'impulsion incidente se propageant dans le vide avec la forme $\mathcal{E}(t - z/c)$ sera représentée par $\mathcal{E}(t - z/v_g)$ dans le milieu. Elle subit alors à un instant donné une compression spatiale d'un facteur $v_g/c \ll 1$. Dans une situation de lumière « lente », l'impulsion est très fortement comprimée. On va supposer que cette compression est suffisamment forte pour que l'impulsion soit complètement contenue dans le milieu. C'est le point de départ de la lumière « arrêtée ». Cet effet intrinsèque de la dispersion peut aussi être analysé en terme énergétique [Chanelière2010a]. Quelle est l'énergie portée par la lumière dans le milieu ? Elle est directement donnée par l'intégrale $U_{\mathcal{E}} = \int_z \mathcal{E}^2(t - z/v_g)$ en supposant l'enveloppe réelle. Si on la compare à

l'énergie incidente $U_{\text{in}} = \int_z \mathcal{E}^2(t - z/c)$, on constate que l'énergie portée par le champ électromagnétique est très fortement réduite

$$U_{\mathcal{E}} = \frac{v_g}{c} U_{\text{in}} \quad (6)$$

Il n'y a pas de dissipation dans ce cas puisqu'on a précisément considéré uniquement le caractère dispersif. Du point de vue des atomes, la dynamique est uniquement imposée par le désaccord $\pm\Delta_0$. L'énergie manquante sous sa forme électromagnétique doit donc être stockée dans le système atomique. On peut le vérifier facilement ce qui permet de résoudre complètement le problème en s'intéressant aux atomes. Je développe la réponse des dipôles à l'ordre le plus bas en ω/Δ_0 (eq. 48) pour obtenir

$$\tilde{r}(\pm\Delta_0, z, \omega) = \mp \frac{\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{\Delta_0} + \omega \frac{\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{\Delta_0^2} \quad (7)$$

ou dans le domaine temporel pour les deux composantes en phase et hors de phase du vecteur de Bloch

$$\begin{aligned} u(\pm\Delta_0, z, t) &= \mp \frac{1}{\Delta_0} \mathcal{E}(z, t) \\ v(\pm\Delta_0, z, t) &= \frac{1}{\Delta_0^2} \frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{\partial t} \end{aligned} \quad (8)$$

Les composantes en phase $u(\pm\Delta_0, z, t)$ dominent celles hors de phase $v(\pm\Delta_0, z, t)$. Il ne faut cependant pas oublier ces dernières car lorsqu'on somme les deux contributions $r(\Delta_0, z, t) + r(-\Delta_0, z, t)$, ce sont elles qui déterminent la relation de dispersion. Cette situation étudiée par Grischkowsky [Grischkowsky1973] s'interprète en terme de suivi adiabatique dans la limite où on néglige l'absorption [Allen1987]. Reste maintenant à évaluer l'énergie contenue dans le système atomique.

Dans le régime perturbatif, la population w ne varie pas au premier ordre en $\mathcal{E}$, il faut donc aller au second ordre. On trouve le résultat en écrivant simplement $w^2 = 1 - u^2 - v^2$, ce qui donne à l'ordre le plus bas

$$w(\pm\Delta_0, z, t) \simeq -1 + \frac{1}{2}u^2(\pm\Delta_0, z, t) = -1 + \frac{1}{2\Delta_0^2} \mathcal{E}^2(z, t) \quad (9)$$

On peut alors écrire l'énergie stockée dans les populations sous la forme (eq. 53)

$$U_w = \alpha c \gamma \int_z (w(\Delta_0, z, t) + w(-\Delta_0, z, t) + 2) = c \frac{\alpha \gamma}{\Delta_0^2} \int_z \mathcal{E}^2(z, t) \quad (10)$$

On y reconnaît l'expression de la vitesse de groupe (eq. 3) et on vérifie

$$U_w = \left(1 - \frac{v_g}{c}\right) U_{\text{in}} \quad (11)$$

Ce raisonnement simple aboutit à **un point crucial du stockage d'information par lumière « lente » : il y a une conversion complète du champ lumineux**

vers les atomes dès que la compression spatiale est suffisante. Le stockage de l'information aussi bien que celui de l'énergie dans le cas de systèmes à deux niveaux est efficace, mais seulement transitoire. L'excitation est certes ralentie, mais elle finit par sortir du milieu. Pour rendre définitif le stockage, il faut alors « arrêter » la lumière en stoppant sa propagation. Avant de décrire les différentes techniques possibles, je vais discuter en guise de conclusion le terme même de lumière « lente ».

On vient de voir en réalité que le champ laser ne contient quasiment plus d'énergie lorsqu'il est dans le milieu. En ce sens là, on pourrait dire que ce n'est pas la lumière qui est « lente », mais plutôt l'excitation atomique qui se propage lentement. On gardera malgré tout le terme lumière « lente » qui garde un impact journalistique certain. Il permet aussi de garder à l'esprit la prépondérance du champ lumineux qui contient certes peu d'énergie, mais assure cependant le transport de l'excitation de proche en proche dans le milieu. Après cette discussion sémantique, intéressons nous à la lumière « lente » comme base de protocole de stockage.

4.2 De la lumière « lente » à la lumière « arrêtée » : trois protocoles

Nous venons de voir en quelque sorte qu'en situation de lumière « lente », la moitié du travail de mémorisation était fait. La conversion du champ vers les atomes est en effet déjà réalisée. Il « suffit » alors de découpler les atomes du champ pour éviter la fuite de l'information à la vitesse de groupe v_g . Les protocoles que je passe en revue par la suite réalisent précisément cette opération.

4.2.1 Lumière « arrêtée » par transparence induite électromagnétiquement

A tout seigneur tout honneur, je commencerai par l'EIT qui est l'exemple historique de protocoles de stockage de lumière [Fleischhauer2000]. Les réalisations ont été poussées très loin avec des vapeurs atomiques. J'en dirai quelques mots en guise d'illustration.

L'EIT est obtenue dans un système à trois niveaux en général [Harris1997, Boller1991]. Pour le stockage, on s'intéresse essentiellement à un schéma dit en Λ (fig. 2) car elle implique deux sous-niveaux du fondamental (structure hyperfine ou Zeeman). La figure dispersive est le résultat de l'interférence destructive introduite par la présence des trois niveaux couplés. La transparence totale est obtenue lorsque la condition de résonance à deux photons est assurée (état noir).

Sans rentrer dans le détail, on peut simplement considérer la réponse spectrale au champ sonde $\mathcal{E}$ en présence du champ de couplage [Lukin2003] (fig. 3).

La ressemblance avec la situation décrite en 4.1.1 permet de se convaincre que l'impulsion se propage en lumière « lente ». La dynamique atomique est cependant très différente. Alors qu'en 4.1.1 on avait considéré deux classes d'atomes à deux-niveaux en $\pm\Delta_0$, on a ici une seule classe mais à trois-niveaux³

3. On peut montrer l'analogie formelle entre $r(\Delta_0, z, t) + r(-\Delta_0, z, t)$ pour le modèle 4.1.1 et la cohérence ρ_{ab} pour l'EIT puis entre $r(\Delta_0, z, t) - r(-\Delta_0, z, t)$ et ρ_{ac} respectivement.

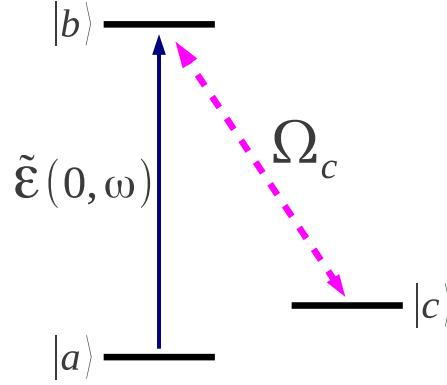


FIGURE 2 – Schéma de niveau en Λ pour réaliser de la lumière « lente » par EIT. Le champ sonde $\mathcal{E}$ à stocker est appliqué sur la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$. Les niveaux $|c\rangle$ et $|b\rangle$ sont reliés par un champ de couplage fort (Ω_c désigne sa fréquence de Rabi).

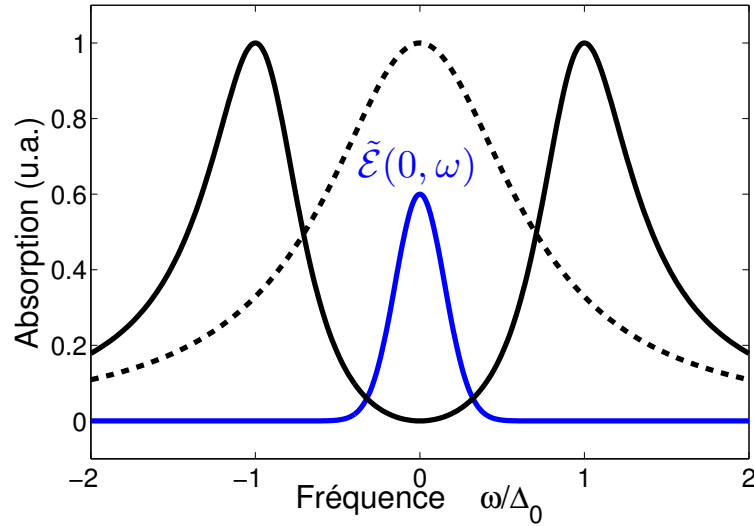


FIGURE 3 – Fenêtre de transparence produite par EIT. Lorsqu'on allume le champ de couplage, on ouvre la fenêtre qui contiendra le signal à stocker $\tilde{\mathcal{E}}(0, \omega)$ (en bleu). A titre de comparaison, j'ai représenté en pointillés la profil d'absorption sans champ de couplage.

On peut cependant approfondir l'analogie afin d'aboutir à une interprétation physique de la lumière « arrêtée » en EIT. Je ne suis pas satisfait par l'interprétation de l'EIT en terme de polariton d'état-noir [Fleischhauer2000]. Le polariton est un objet hybride dont l'équation de propagation est simple, mais qui n'a pas de réalité physique. Dans le cas de l'EIT, le polariton mélange le signal et la cohérence de spin ce qui est déroutant car les deux objets ont des fréquences complètement différentes. Ce fut une motivation pour développer une interprétation avec des atomes à deux-niveaux en analysant indépendamment la propagation lumineuse et l'état des cohérences atomiques. C'est dans ce cas que la cohérence Raman suit adiabatiquement le champ⁴. Son excitation se propage à la vitesse de groupe.

4. C'était $r(\Delta_0, z, t) - r(-\Delta_0, z, t)$ pour le modèle 4.1.1 (voir eq. 8)

Il devient maintenant très facile de découpler les atomes du champ et d'ainsi franchir le pas entre lumière « lente » et lumière « arrêtée ». On empêche les atomes de rayonner en éteignant le champ de couplage. En effet, le rayonnement n'est possible qu'à partir de la cohérence Raman que le champ de couplage convertit en cohérence optique. Sans champ de couplage, l'excitation de la cohérence Raman qui contient l'information du champ sonde ne peut se propager et reste sur place.

Cette étape est réversible puisqu'il est possible de faire ressortir la lumière en allumant à nouveau le champ de couplage. Ce point-là n'a rien d'évident en réalité et il demanderait une analyse complète pour les différents protocoles de stockage dispersif. L'étude de ce régime transitoire sort du cadre de ce mémoire, mais reste une perspective passionnante.

Après cette analyse théorique, il est important de présenter quelques résultats pour montrer jusqu'où ont été poussées les expériences. J'ai été impliqué dans ces réalisations lors de mon séjour postdoctoral au Georgia Institute of Technology. Nous avons pu démontrer en 2005 qu'il était possible de stocker et restituer un photon unique par lumière « arrêtée » basée sur de l'EIT [Chanelière2005a, voir Articles VII-C].

Nous utilisons alors une vapeur de rubidium refroidie par laser. Le système en Λ s'appuie sur la structure hyperfine de l'isotope 85. Nous avons vérifié en premier lieu la présence de la fenêtre de transparence lorsqu'on allume de champ de couplage (fig. 4). On mesure ainsi indépendamment la largeur de la fenêtre en accord avec le calcul à partir de la fréquence de Rabi Ω_c et de l'épaisseur optique.

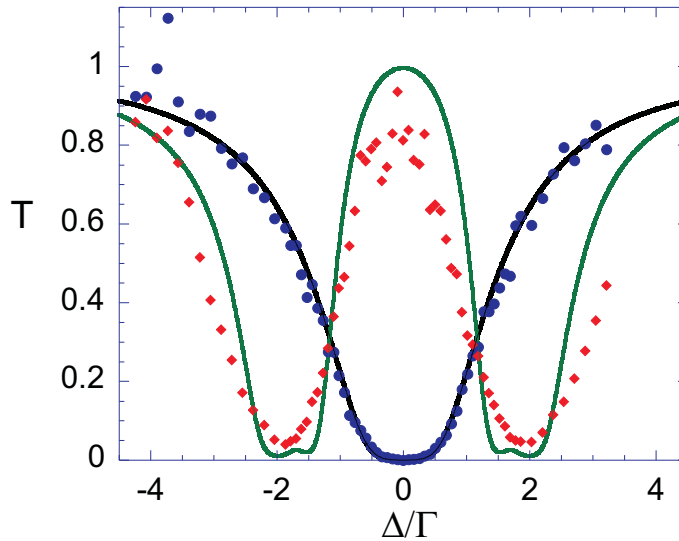


FIGURE 4 – Extrait de [Chanelière2005a, voir Articles VII-C]. Profil de transmission en fonction de la fréquence du laser ici notée Δ et où Γ désigne la largeur naturelle de la transition. Nous vérifions ici l'apparition de la fenêtre de transparence lorsque le champ de couplage est allumé (points rouges). Les points bleus servent de référence lorsque le champ est éteint. En traits pleins, les ajustements à partir du calcul de la susceptibilité [Lukin2003]. L'impulsion sonde est produite à partir d'un laser fortement atténué pour ne contenir que 0,3 photon. La fréquence de Rabi du champ de couplage est $\Omega_c = 3\Gamma$.

La spectroscopie est réalisée avec moins d'un photon par impulsion, ce qui permet de vérifier le niveau de bruit de la détection. La difficulté technique essentielle est l'isolation

des modes sonde et de couplage. Ce dernier contient typiquement 10^{14} photon pendant la durée de la sonde ce qui donne une idée de la tâche accomplie pour obtenir le résultat.

On passe enfin à l'expérience de stockage proprement dite (fig. 5).

Nous utilisons alors une source de paires de photons dont on va stocker un des deux éléments. On vérifiera en sortie de la mémoire que les corrélations non-classiques sont bien préservées (coïncidences). Je ne décrirai pas la source de paires même si elle est originale et représente en soi une avancée cruciale dans le domaine des mémoires quantiques [Matsukevich2005].

Nous avons observé une réémission du signal lorsque l'on rallume le champ de couplage (fig. 5.B et C). L'efficacité est de l'ordre de quelques %. Même si l'amplitude du signal atteint $\sim 30\%$, il est fortement déformé. L'impulsion est en réalité coupée, car elle n'est pas suffisamment compressée, en d'autres termes, elle ne tient pas complètement dans le milieu. On voit en effet que le retard de groupe est relativement faible (fig. 5.A). L'épaisseur optique n'est pas suffisante, c'est une limite expérimentale. L'expérience est bien décrite par le calcul théorique en incluant les paramètres expérimentaux mesurés indépendamment comme l'absorption (fig. 5.D, E et F).

Le temps de stockage est de quelques μs (fig. 5.C). Il est limité par la durée de vie de la cohérence Raman, porteuse de l'information pendant le stockage. Elle est perturbée par des champs magnétiques parasites qui devront être compensés dans un second temps.

Les mesures en intensité de la fig. 5 n'ont en réalité rien de quantique. Même si elles impliquent une source non classique, ce n'est que la mesure de corrélation entre champs qui révèle son caractère quantique. C'est précisément ce que nous avons vérifié ensuite dans [Chanelière2005a, voir Articles VII-C], ce qui nous a permis de confirmer l'aspect quantique du stockage. Je ne détaillerai pas les techniques de mesure de corrélation qui sont pourtant un point-clé des expériences d'optique quantique.

Cette réalisation qui traduit la maturité de la technique de lumière « arrêtée » se plaçait dans un contexte bouillonnant. Il est difficile de résumer toutes les expériences tant elles ont été nombreuses et poussées loin dans le domaine de l'information quantique. L'EIT est bien adaptée aux vapeurs, car elles présentent un système en Λ de par la structure hyperfine. On peut obtenir en pratique des épaisseurs optiques importantes. Des démonstrations ont été faites aussi bien dans des cellules chaudes [Eisaman2005] que dans des vapeurs froides [Chanelière2005a, voir Articles VII-C]. Pour ces dernières, les techniques d'atomes froids offrent un contrôle précis et efficace qui permet d'obtenir des temps de cohérence et donc de stockage long (6ms pour [Zhao2009]).

On notera aussi l'utilisation originale de système hybride où un ensemble faiblement absorbant est maintenu par piégeage laser dans une cavité de finesse moyenne [Thompson2006, Simon2007a, Simon2007b]. On est alors dans une situation intermédiaire entre une cavité QED avec un atome et un ensemble dans l'espace libre. Je discuterai des avantages possibles de ce genre d'approche en 14.3.

Les premières démonstrations impliquaient des photons uniques en régime de comptage. Rapidement après, des variables continues ont été mémorisées par la même technique aussi bien dans des vapeurs chaudes [Appel2008] que froides [Akamatsu2004, Honda2008]. Ce résumé très parcellaire représente mal le foisonnement du domaine. Je citerai donc en conclusion quelques revues dont les bibliographies en donnent une

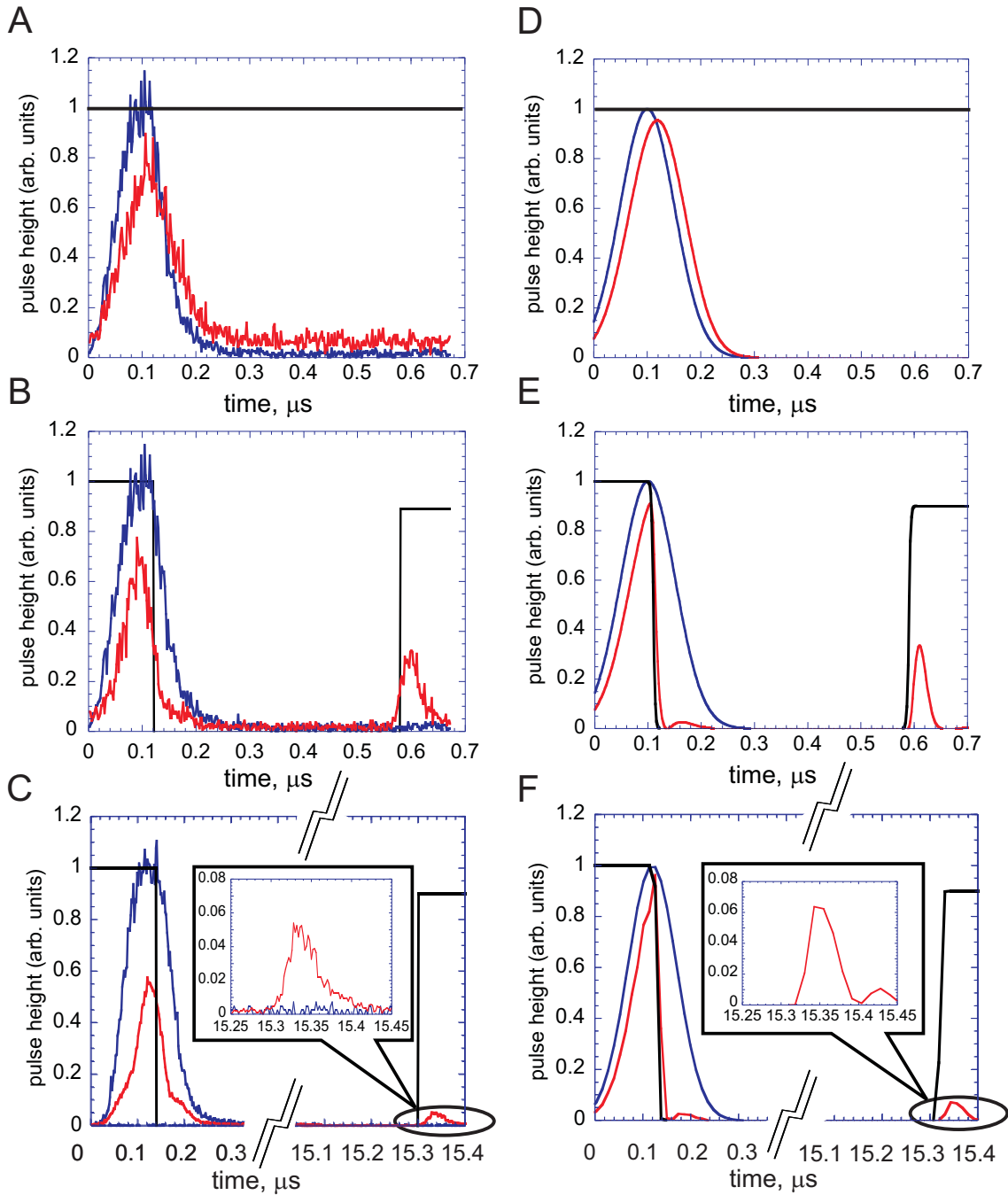


FIGURE 5 – Extrait de [Chanelière2005a, voir Articles VII-C]. Lumière « lente » (A) puis lumière « arrêtée » avec des temps de stockage de 500ns (B) et 15 μs (C). En bleu, l'impulsion incidente et en rouge le signal transmis. On a représenté le champ de couplage en noir, il est éteint puis rallumé pour les expériences (B) et (C). Sur la colonne de droite, (D), (E) et (F) représentent le calcul théorique.

vision plus exhaustive [Simon2010, Kimble2008, Hammerer2010, Lvovsky2009].

Après cet exemple détaillé d'utilisation de l'EIT pour arrêter la lumière, je vais présenter d'autres protocoles qui se basent sur la lumière « lente ».

4.2.2 Lumière « arrêtée » par hole-burning spectral

Motivé par la volonté de proposer des protocoles alternatifs à l'EIT qui restent difficile à mettre en œuvre dans des solides dopés [Turukhin2001, Longdell2005, Baldit2005], Romain Lauro a proposé lors de sa thèse de produire une figure dispersive par *hole-burning* spectral (SHB) [Lauro2009b]. Cette proposition permet d'exploiter des systèmes différents des vapeurs atomiques et en ce qui nous concerne les ions de terre rare en matrice cristalline.

Dans ces cristaux dopés, il est en effet possible de creuser par pompage optique vers des niveaux de longue durée de vie (hyperfins par exemple) [Kaplanski1987] une fenêtre de transparence spectrale (fig. 6).

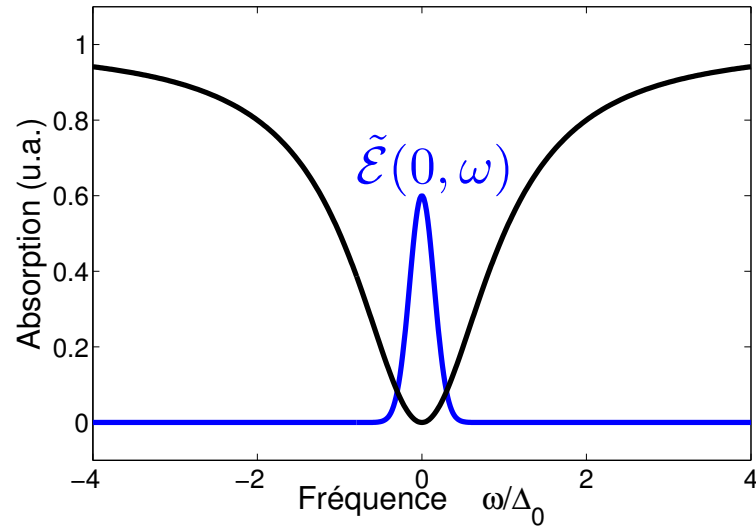


FIGURE 6 – Schéma d'une fenêtre de transparence creusée par SHB. On suppose un fond absorbant très large (élargissement inhomogène) avec un trou de forme lorentzienne (largeur Δ_0). On y associe une figure de dispersion qui permet d'observer de la lumière « lente ».

Pour une fenêtre de forme lorentzienne (largeur Δ_0), on obtient pour la vitesse de groupe [Shakhmuratov2005, Rebane2007]

$$\frac{1}{v_g} = \frac{1}{c} + \frac{\alpha}{\Delta_0}. \quad (12)$$

Cela ne change pas la nature de notre analyse en 4.1.1, d'autant plus vraie qu'on est ici en présence d'atomes à deux niveaux. Nous avons vérifié en premier lieu cette expression [Lauro2009a] pour différentes largeurs du trou spectral Δ_0 (fig. 7) dans un cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ dopé à 0,5%. Ce matériau sous champ magnétique est bien adapté

au SHB [Ohlsson2003]. Nous pouvons alors pleinement exploiter la finesse de notre diode laser stabilisée à 793nm sur une cavité de référence.

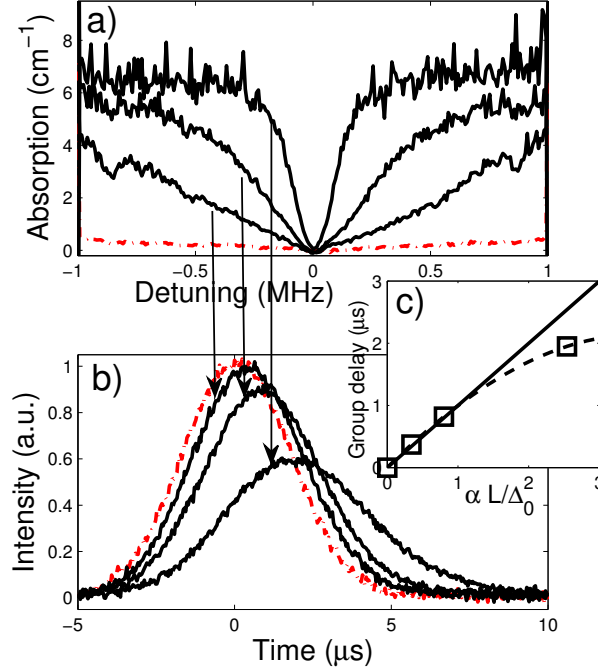


FIGURE 7 – Lumière « lente » obtenue par SHB (extrait de [Chanelière2010a]). On fait varier la largeur de la fenêtre de transparence en saturant le pompage optique préparatoire du SHB (a). Nous observons un ralentissement d'autant plus important que la fenêtre s'affine (eq. 12). Lorsque la fenêtre devient trop étroite, le spectre de l'impulsion n'y est plus contenu et est partiellement absorbé. La vitesse de groupe (c) dévie alors de la loi attendue (eq. 12)

La lumière « lente » n'est qu'une étape vers la lumière « arrêtée ». Il faut alors faire intervenir un troisième niveau (fig. 8).

Nous proposons alors d'appliquer une impulsion Raman sur la transition disponible pour découpler le dipôle optique du champ excitateur [Lauro2009b]. Lorsque l'impulsion est comprimée dans le milieu, la cohérence optique contient l'essentiel de l'excitation. Par une conversion Raman, on emprisonne cette information dans la cohérence du spin. Cette dernière ne rayonne pas. L'excitation reste dans le milieu. L'opération inverse permet la restitution.

La similitude avec la situation EIT décrite en 4.2.1 n'est qu'apparente même si elle est troublante. Dans la situation SHB, on excite directement de façon transitoire la cohérence optique que l'on convertit ensuite en cohérence Raman. Au contraire en EIT, on n'excite pas la cohérence optique, l'état excité étant en quelque sorte court-circuité en faveur de la cohérence Raman.

L'application d'impulsions Raman pour arrêter la lumière n'est pas évidente dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ pour plusieurs raisons.

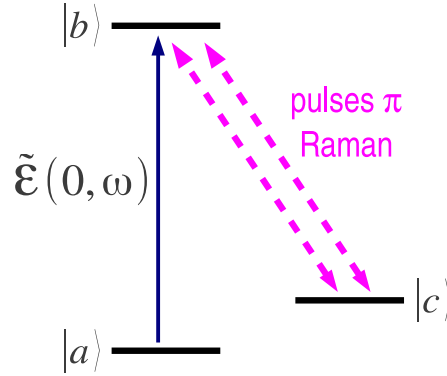


FIGURE 8 – Utilisation d’un troisième niveau pour arrêter la lumière dans un trou spectral. Lorsque l’impulsion sonde est comprimée dans le milieu, on applique une impulsion π Raman ce qui transfère la cohérence optique en cohérence du spin. Le dipôle optique ne rayonnant plus, la lumière est arrêtée. L’opération inverse permet de faire ressortir le signal.

D’une part, le thulium trivalent ne possède que deux niveaux dans le fondamental sous champ magnétique [Louchet2007, de Seze2006]. Cela semble suffisant pour effectuer la conversion Raman mais ça serait oublier un peu vite que le protocole démarre par la création d’un trou spectral par pompage optique. Nous exploitons déjà les niveaux Zeeman pour créer la structure dispersive, le niveau $|c\rangle$ n’est alors plus disponible puisqu’il sert à l’accumulation des populations du trou. Nous avons proposé d’utiliser alors la longue durée de vie du niveau excité ($\sim 500\mu s$) qui possède une structure Zeeman dans laquelle il est possible d’accumuler des populations de façon transitoire. Les sous niveaux du fondamental restent ainsi disponibles pour le transfert Raman.

D’autre part, Tm^{3+} :YAG possède un fort élargissement inhomogène de la transition Raman qui peut atteindre une centaine de kHz [de Seze2006], limitant le temps de stockage dans les niveaux de spin. Cela peut rendre impossible le transfert Raman qui doit être plus rapide que l’inverse de l’élargissement imposant une contrainte forte sur la puissance des impulsions Raman. Nous avons donc entamé une étude de fond des sources d’élargissement inhomogène de la transition du spin et développé des techniques originales de compensation par des techniques inspirées de l’écho de spin [Lauro2011, Pascual-Winter2012b].

Le travail sur ce protocole est en cours. Il résume bien dans la démarche la façon de travailler du groupe. Avant de terminer cette partie sur la lumière « lente », je vais présenter une dernière façon d’arrêter la lumière.

4.2.3 Lumière « arrêtée » par contrôle dynamique du désaccord

Je vais exposer un travail récent qui me permet de boucler la boucle. Nous avons proposé avec G. Hétet et D. Wilkowski [Hétet2012, voir Articles VII-D] le protocole CHoS pour Controlled Homogeneous Splitting afin d’exploiter directement la situation théorique à la base de ma description de la lumière « lente » en 4.1.1. Autrement dit, en se basant uniquement sur des systèmes à deux niveaux, je vais montrer qu’il est possible

d'arrêter la lumière. Nous avons imaginé un schéma de niveaux simple (fig. 9) avec deux classes différentes d'atomes à deux niveaux.

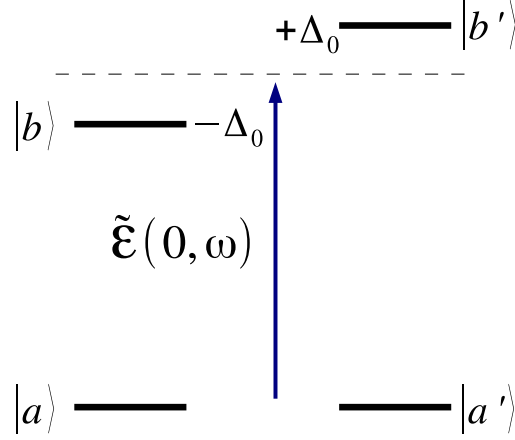


FIGURE 9 – Schéma de niveaux pour arrêter la lumière par contrôle dynamique du désaccord. Deux classes d'atomes sont désaccordées l'une de l'autre de $2\Delta_0$. Le signal est accordé entre les deux résonances.

Le spectre incident est choisi pour satisfaire le schéma de la figure 1. On est bien en situation de lumière « lente ». Il n'est maintenant plus question d'utiliser une cohérence Raman pour découpler l'émission des cohérences optiques du champ exciteur. Nous avons en effet montré [Hétet2012, voir Articles VII-D] qu'il était possible d'arrêter la lumière en jouant dynamiquement sur le désaccord Δ_0 plus précisément en annulant Δ_0 brutalement (plus rapidement que $1/\gamma$).

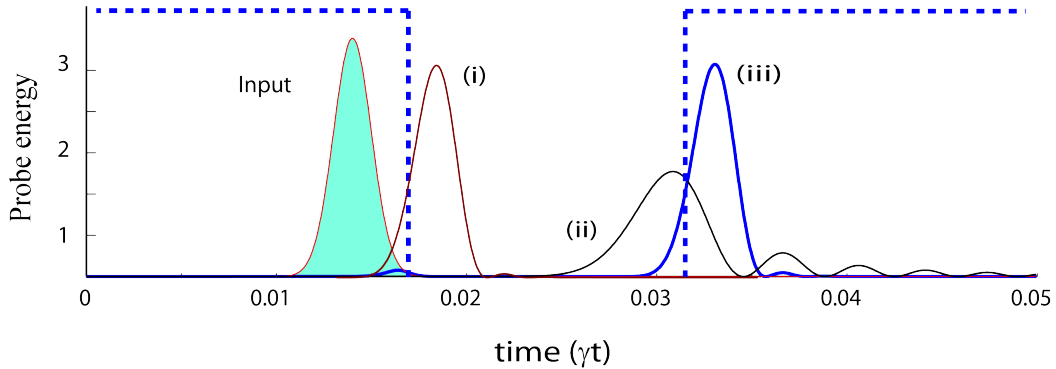


FIGURE 10 – Simulation des équations de Bloch-Maxwell (extrait de [Hétet2012, voir Articles VII-D]). On vérifie d'abord l'effet de lumière « lente » pour l'impulsion sonde (durée $0,002/\gamma$) avec $\Delta_0 = 3600\gamma$ et $\Delta_0 = 2000\gamma$ pour les courbes (i) et (ii) respectivement. Quand on annule le désaccord (représenté en pointillés), la sonde est stockée puis réémise (courbe (iii)). L'épaisseur optique est grande ici $\alpha L = 6.10^4$. La durée de mémorisation est limitée par γ .

Il y a une analogie formelle entre cette situation et l'EIT 4.2.1. En effet, on peut reconnaître dans le spectre de la figure 1 la situation EIT avec une très fort champ de couplage Ω_c . Le doublet de niveau $\pm\Delta_0$ n'est alors autre que le doublet Autler-Townes séparé par le *light-shift* $\pm\Omega_c$. On peut filer cette analogie jusqu'à dériver un

polariton d'état noir [Hétet2012, voir Articles VII-D]. Cette analogie formelle n'est pas satisfaisante, car en présence d'atomes à deux niveaux, on voit mal comment empêcher le rayonnement comme cela était le cas en EIT où le champ de couplage éteint interdisait à la cohérence Raman de rayonner.

Sans rentrer dans le détail, nous avons montré que l'annulation rapide du désaccord permet de piéger le système atomique dans un état qui ne rayonne pas. Si on revient aux équations du suivi adiabatique qui traduit l'interaction hors-résonance (voir 8), on peut alors décomposer l'état atomique en deux états $r(\Delta_0, z, t) - r(-\Delta_0, z, t)$ et $r(\Delta_0, z, t) + r(-\Delta_0, z, t)$. C'est en réalité l'état $r(\Delta_0) - r(-\Delta_0)$ qui domine car la composante en phase u est bien supérieure à celle hors de phase v (eqs. 8). Cet état peut être qualifié de subradiant à cause de l'interférence destructive des deux termes $r(\Delta_0) - r(-\Delta_0)$. L'état superradiant $r(\Delta_0) + r(-\Delta_0)$ est négligeable. On comprend schématiquement comment on piège le système dans un état non rayonnant permettant la lumière « arrêtée » dans des systèmes uniquement à deux niveaux.

La réalisation expérimentale n'est pas simple à l'inverse du schéma de principe. Une très grande épaisseur optique est nécessaire [Hétet2012, voir Articles VII-D]. Nous avons proposé deux types de systèmes expérimentaux qui présentent naturellement des transitions étroites.

D'un côté, une vapeur dense et froide de strontium [Chalony2011] possède une raie d'intercombinaison étroite ($\sim 7,5\text{kHz}$). On utilise alors le splitting Zeeman Δ_0 de la transition $J = 0 \rightarrow J = 1$ que l'on contrôle dynamiquement en éteignant le champ magnétique. On peut interpréter dans ce cas, l'absence de rayonnement comme une rotation du dipôle induit le long de l'axe de propagation.

De l'autre, les cristaux dopés aux ions de terre rare présentent des transitions étroites lorsqu'ils sont refroidis à basse température. Malgré un fort élargissement inhomogène, il est possible de créer un pic étroit par sélection spectrale (pompage optique) [Hedges2010]. On peut ensuite contrôler la fréquence de résonance par effet Stark DC (électrode sur le cristal). La situation où deux pics sont séparés de $\pm\Delta_0$ par l'application d'un champ électrique est en réalité assez courante dans des cristaux d'oxydes (*Pseudo-Stark splitting* [Macfarlane2007]). Même si les épaisseurs optiques restent faibles (quelques dizaines), une démonstration de principe semble possible.

4.2.4 Conclusion

Nous venons de voir que la lumière « lente » était un point de départ très important pour réaliser le stockage. Dans la situation de compression spatiale forte, la lumière donne son excitation aux atomes. J'ai présenté ensuite trois façons d'arrêter la lumière complètement. Ces approches sont différentes, mais ont toutes en commun de découpler les atomes du champ exciteur. En EIT 4.2.1, il suffit d'éteindre le champ de couplage pour isoler la cohérence Raman. C'est un point commun avec le protocole exploitant le *hole-burning* spectral 4.2.2 puisqu'après excitation transitoire des cohérences optiques, on transfère l'information vers la cohérence Raman qui ne rayonne pas. J'ai terminé en présentant une proposition plus récente qui s'appuie uniquement sur des systèmes à deux niveaux 4.2.3. On découple les atomes du champ en s'assurant que leurs émissions sont déphasées. Émettant en opposition, le désaccord de phase empêche l'émission globale.

On peut généraliser ce raisonnement, ce qui nous permettra d'avoir une approche globale des protocoles de stockage dispersifs. La lumière « lente » n'est en réalité qu'une classe d'effets dispersifs. La plus simple certes puisque l'indice varie linéairement, mais pas la seule.

4.3 Protocole Raman hors résonance

J'analyse dans cette partie un protocole original proposé par J. Nunn *et al.* [Nunn2007, Surmacz2008] dans un système à trois niveaux et qui fut à la source de démonstration expérimentale récente dans le groupe de I. Walmsley [Reim2010, Reim2011, Reim2012, England2012]. L'analyse théorique avait été largement préparée par Gorshkov *et al.* [Gorshkov2007a] dont l'approche universelle traitait ensemble EIT et Raman hors résonance. Ce travail théorique remarquable ne me satisfait pas complètement puisqu'on perd de vue l'échange entre lumière et excitation atomique. Ma réflexion alternative est malheureusement peu aboutie ce qui s'explique par la complexité conceptuelle du protocole. J'atteins ici les limites de mon analyse. Je propose donc des pistes plutôt qu'une vision complète.

4.3.1 Réponse retardée impulsionnelle d'un système à deux niveaux.

Dans la logique propre à ce chapitre, je considère en premier lieu un système à deux niveaux. Je tâcherai à la fin de raccorder mon analyse avec la proposition de J. Nunn *et al.* [Nunn2007] dans un système à trois niveaux. Le spectre de l'impulsion incidente est représentée sur la fig. 11.

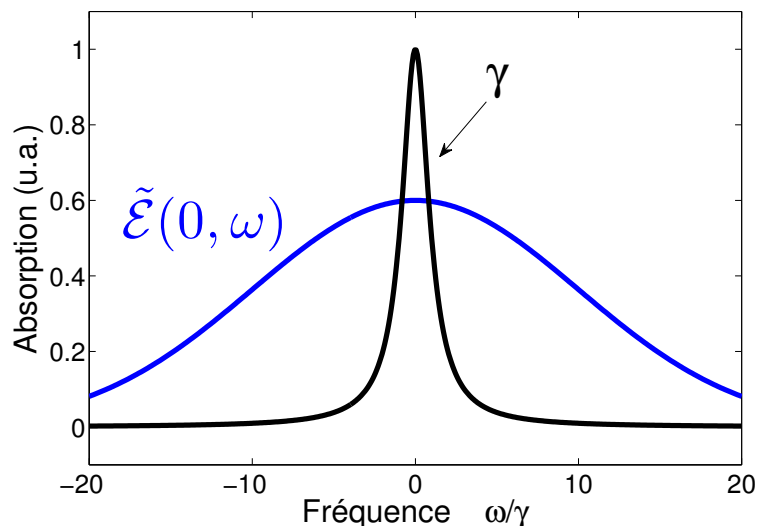


FIGURE 11 – Je considère l'effet dispersif d'une seule résonance atomique sur la propagation d'une impulsion. Le spectre incident est plus large que la résonance.

Je choisis un spectre centré sur une résonance atomique, mais bien plus large que celle-ci. La situation inverse n'aurait pas de sens dans le cadre de notre analyse sur les effets dispersifs. Le spectre serait alors plus étroit que la résonance, il serait absorbé

de façon dissipative pour une raie homogène. La propagation décrite dans le régime perturbatif s'écrit (eq. 46)

$$\frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{\partial z} + i\frac{\omega}{c}\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) = -\frac{\alpha}{2}\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)\frac{1}{1 + i\omega/\gamma} \quad (13)$$

Dans la situation où la bande passante est plus large que γ , il est possible de négliger l'absorption qui correspond à la partie réelle de $\frac{1}{1 + i\omega/\gamma}$. On ne considère que le terme en $i\omega/\gamma$ qui domine la propagation. On obtient donc dans le domaine spectral en sortie :

$$\tilde{\mathcal{E}}(L, \omega) = \tilde{\mathcal{E}}(0, \omega) \exp\left(-\frac{\alpha L \gamma}{2i\omega}\right) \exp\left(-\frac{i\omega L}{c}\right) \quad (14)$$

Pour alléger la notation, on va omettre le terme en $\exp\left(-\frac{i\omega L}{c}\right)$ qui représente le retard induit par la propagation. Cela revient à se placer dans le repère en translation. On repasse dans le domaine temporel pour étudier l'effet de la dispersion sur l'impulsion en sortie du milieu. Cette dernière est décrite comme le produit de convolution ($\star$) entre le champ incident $\mathcal{E}(0, t)$ et une fonction $F(L, t)$ qui est la transformée de Fourier inverse du terme $\exp\left(-\frac{\alpha L \gamma}{2i\omega}\right)$.

On a donc

$$\mathcal{E}(L, t) = \mathcal{E}(0, t) \star F(L, t) \quad (15)$$

On calcule $F(L, t)$, la réponse impulsionnelle du milieu, à partir des tables de transformée de Fourier des fonctions trigonométriques [Bateman1954]. On trouve en effet :

$$F(L, t) = \delta_t - \alpha L \gamma \frac{J_1(\sqrt{2\alpha L \gamma t})}{\sqrt{2\alpha L \gamma t}} \text{ pour } t > 0 \text{ et } 0 \text{ sinon} \quad (16)$$

où J_1 est la 1ère fonction de Bessel de première espèce⁵.

Dans le cas où $\alpha L \gamma t \ll 1$, l'effet de la fonction de Bessel est négligeable et l'impulsion n'est que peu déformée. Si on introduit la bande passante de l'impulsion $\Delta\omega$ que l'on a supposée bien plus grande que γ , cette condition de faible épaisseur optique se résume à $\alpha L \ll \Delta\omega/\gamma$. On s'intéresse maintenant au cas inverse où l'épaisseur optique est suffisamment grande pour induire une déformation significative $\alpha L \gg \Delta\omega/\gamma$. Le résultat de la propagation est représenté sur la figure 12.

On constate l'effet grandissant de la dispersion (terme en J_1) lorsqu'on augmente l'épaisseur optique pour avoir $\alpha L \gg \Delta\omega/\gamma$. J'ai choisi $\Delta\omega/\gamma \sim 50$ pour la figure 12.. De nombreuses oscillations apparaissent alors. Sans se focaliser sur la forme exacte de l'impulsion de sortie, on peut voir que la réponse est de plus en plus retardée. On voit notamment pour $\alpha L = 1000$ (voir l'insert sur fig. 12), que la réponse du milieu se produit pour l'essentiel bien après l'arrivée de l'impulsion excitatrice. Il ne s'agit pas d'un retard net comme dans le cas de la lumière « lente » mais on peut parler de réponse retardée de façon générale. Il existe en réalité un moment où le milieu contient toute l'impulsion malgré sa déformation.

5. Ce terme typiquement dispersif est à la base de la théorie des précurseurs développée par Brillouin et Sommerfeld [Brillouin1960] pour clarifier la notion de propagation supraluminique.

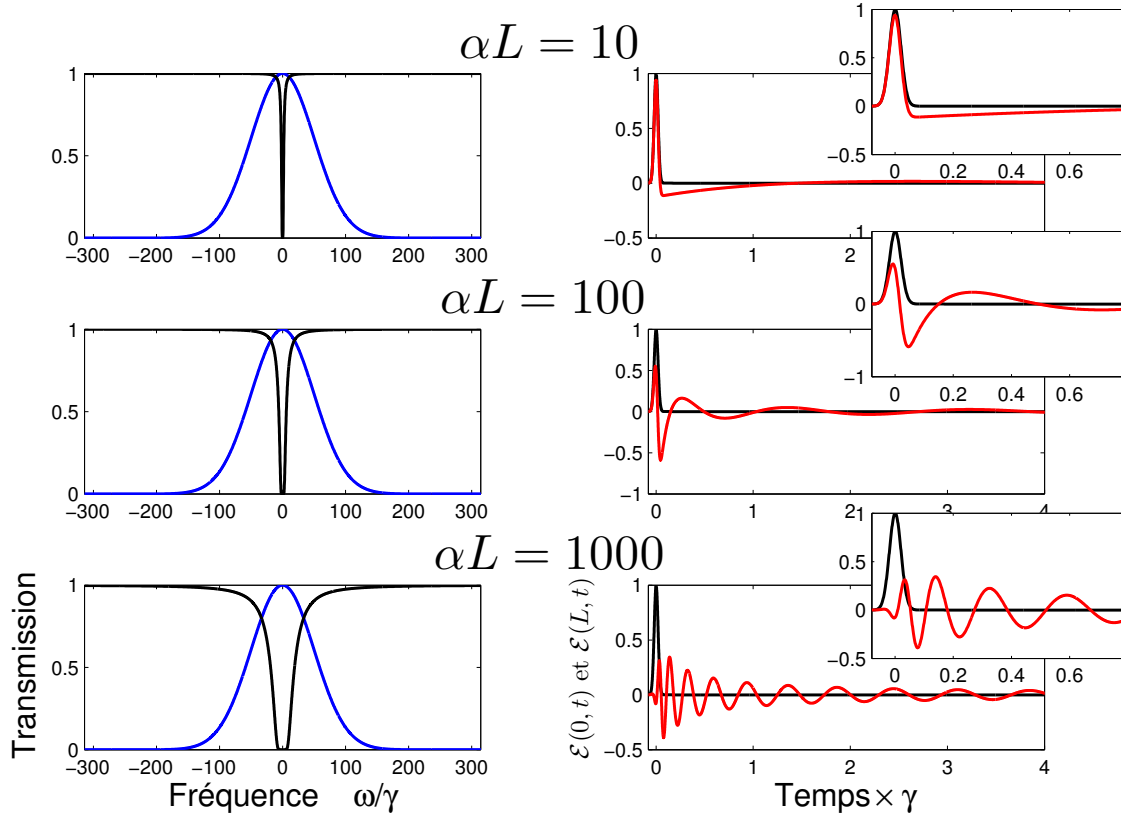


FIGURE 12 – Propagation d’une impulsion dont le spectre est beaucoup plus large que la transition (en bleu sur les courbes de gauche). J’augmente l’épaisseur optique $\alpha L\gamma = 10$, $\alpha L\gamma = 100$ et $\alpha L\gamma = 1000$ respectivement de la première à la dernière ligne. Sur la droite, comparaison de l’impulsion entrante ($\mathcal{E}(0, t)$ en noir) avec l’impulsion de sortie ($\mathcal{E}(L, t)$ en rouge). J’ai représenté en insert les temps courts. On choisit comme impulsion entrante une forme gaussienne de durée $\frac{1}{50\gamma}$ que l’on garde constante, seule varie ensuite l’épaisseur optique.

4.3.2 Protocole Raman

Cette réponse retardée peut-être à la base de proposition de stockage dans la mesure où il est possible de découpler les atomes du champ lorsque l’impulsion est précisément dans le milieu. C’est le sens de la proposition de J. Nunn *et al.* [Nunn2007] dans un système à trois niveaux en utilisant un champ de couplage Raman de façon analogue à l’EIT. L’approche de Nunn est en réalité bien plus complète que la simple analyse résumée par la figure 11. Mon approche peut être qualifiée de statique, puisque j’étudie d’abord la propagation dans un milieu figé. On imagine ensuite une variation instantanée d’un paramètre (coupure du champ de couplage, impulsion π Raman, variation du désaccord). Dans le protocole Raman hors résonance, Nunn considère dès le début une variation temporelle de champ de couplage, autrement dit une forme plus complexe que sa simple extinction à un moment donné. L’analyse statique n’est alors pas adaptée même si elle permet de comprendre quelques éléments importants. Dans le protocole Raman hors résonance [Nunn2007], on considère le pic d’absorption Raman obtenu lorsque le champ de couplage est largement hors résonance (fig. 13). Ce dernier fait office de

système à deux niveaux effectif basé de l'analyse précédente. Sa largeur est alors $\Omega_c^2\Gamma/\Delta_0^2$ avec les notations de la figure 13.

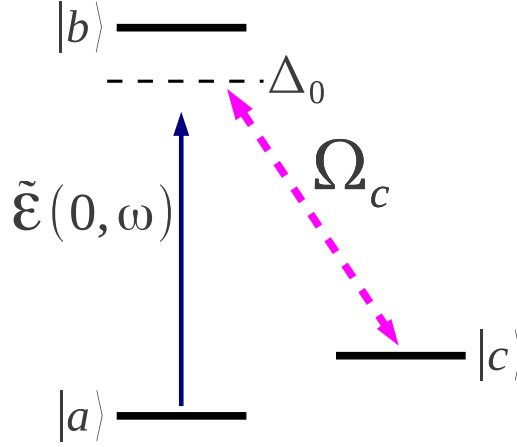


FIGURE 13 – Schéma de niveaux pour le protocole Raman hors résonance. Le faisceau de couplage est décalé de Δ_0 de la résonance. L'absorption Raman apparaît lorsque le champ sonde est désaccordé de $\Delta_0 + \Omega_c^2/\Gamma$ où Ω_c^2/Γ désigne le *light-shift* (Γ est la largeur du niveau $|b\rangle$).

Dans le cadre de mon analyse en terme de réponse retardée, on voit que si l'on coupe le champ de couplage, on imprime directement le champ signal dans la profondeur du matériau de façon similaire à l'EIT. Ici, la forme spatiale de l'excitation atomique stockée, parfois appelée onde de spin n'a pas la forme temporelle du signal. Elle est déformée par la dispersion qui n'est plus linéaire comme pour l'EIT. L'apport de Nunn et Gorshkov [Nunn2007, Gorshkov2007a] est précisément de montrer que lorsqu'on considère une variation temporelle optimisée du champ de couplage, il est possible de stocker et restituer fidèlement le signal même si l'onde de spin n'en est pas une simple copie⁶.

4.3.3 Conclusion

Comme on vient de le voir, il n'est pas nécessaire d'avoir une situation de lumière « lente » pour obtenir une réponse du milieu fortement retardée malgré tout. Mon analyse n'embrasse pas la complexité du protocole Raman hors résonance. La variation temporelle du champ de couplage offre un degré de liberté important qui rend caduque mon approche statique.

Ce dernier protocole est important, car il porte un message fort. Tout effet dispersif induit une réponse retardée du système atomique. C'est bien le point de départ des différents protocoles présentés ici. Le protocole Atomic Frequency Comb (AFC) rentre

6. Avec une variation temporelle optimisée du champ de couplage, on retrouve malgré tout la forme oscillante de l'onde de spin décrite par les fonctions de Bessel [Reim2010, eq. (S1), Supplementary information]. Pour essayer de se convaincre de la pertinence de mon analyse en terme de système à deux niveaux, on pourra comparer la condition obtenue par Nunn [Reim2010, eq. (S1), Supplementary information], qui fait intervenir le paramètre $C^2 \sim \alpha L \frac{\Omega_c^2}{\Delta\omega} \frac{\Gamma}{\Delta_0^2}$ où $\frac{\Omega_c^2}{\Delta\omega}$ représente l'énergie impulsienne du champ de couplage. On pourra reconnaître la condition $\alpha L \gg \Delta\omega/\gamma$ pour un système à deux niveaux puisque dans le cas Raman, $\Omega_c^2\Gamma/\Delta_0^2$ désigne la largeur du pic d'absorption Raman.

en réalité dans cette catégorie et devrait figurer dans ce chapitre. Je le traiterai à part (voir 6) car il est très tentant de le mettre dans la catégorie des échos de photons que je vais décrire maintenant.

5 Protocoles basés sur l'écho de photon

Il me faut mettre en garde le lecteur. Je sous-entends dans cette partie écho à deux impulsions [Kopvillem1963, Kurnit1964, Abella1966, Hartmann1968]. Je le décrirai par la suite. Je parlerai plus tard de l'écho à trois impulsions (voir 6) qui repose sur des mécanismes physiques différents [Chen1979, Samartsev2010] mais dont la dénomination peut être équivoque.

On a opposé en introduction de la première partie, absorption et dispersion. C'est précisément le cas lorsqu'on considère l'écho de photon comme protocole de stockage. À l'inverse des protocoles dispersifs où on privilégie une excitation hors résonance, l'écho de photon démarre d'une excitation à résonance par le signal.

Le milieu doit présenter un élargissement inhomogène sinon le stockage ne sera pas possible. En effet, la bande passante du signal doit être plus large que l'élargissement homogène. Dans le cas contraire, la durée d'impulsion sera plus longue que le temps de cohérence ce qui est rédhibitoire pour le stockage d'information. En l'absence d'élargissement inhomogène, le signal ne pourra pas être efficacement absorbé simplement, car sa bande passante est plus large. On retrouve en réalité la situation dispersive décrite en 4.3.1 au détail près que l'absorption n'est possible que si l'élargissement inhomogène est beaucoup plus grand que la bande passante. On supposera par la suite que l'élargissement inhomogène est très grand alors que l'élargissement homogène est très petit (absence de décohérence).

On voit alors apparaître les caractéristiques de l'écho de photon. Le nécessaire élargissement inhomogène induit un déphasage des cohérences après l'étape d'absorption. L'écho de photon et toutes les techniques qui s'en inspirent consistent précisément à produire un rephasage à un instant ultérieur où l'écho est émis. Outil de choix pour la spectroscopie, servant à mesurer le temps de cohérence noyé par l'élargissement inhomogène, la technique fut reprise dans le contexte des mémoires quantiques. On compare alors signal et écho pour évaluer les performances du stockage.

Je présenterai en premier lieu l'écho à deux impulsions qui reste une référence historique. Il est tentant de le considérer comme un protocole de stockage quantique. J'en montrerai les limitations dans ce contexte. Je décrirai plus brièvement le protocole Controlled Reversible Inhomogeneous Broadening (CRIB). Nous n'avons pas spécifiquement travaillé dessus dans le groupe mais il constitue la première proposition théorique d'un protocole efficace et fidèle à 100%. Dans ce sens-là, c'est l'archétype des protocoles basés sur l'écho de photon à l'instar de l'EIT pour les protocoles dispersifs. Je conclurai en décrivant le protocole Revival of Silenced Echo qui a été inventé dans le groupe et qui représente une voie prometteuse en cours d'étude.

5.1 L'écho à deux impulsions

Dans sa version canonique, particulièrement utile pour la spectroscopie optique et surtout RMN, on applique deux impulsions d'aires fortes séparées d'un temps t_{12} . On observe un écho au temps $2t_{12}$ [Allen1987]. Le signal est optimisé lorsque la première impulsion a une aire de $\pi/2$. Elle excite de façon maximale les cohérences qui commencent à se déphaser à cause de l'élargissement inhomogène. La seconde impulsion d'aire π induit un rephasage qui se produit à $2t_{12}$. Cette séquence peut être exploitée pour en faire un protocole de stockage lumineux (fig. 14).

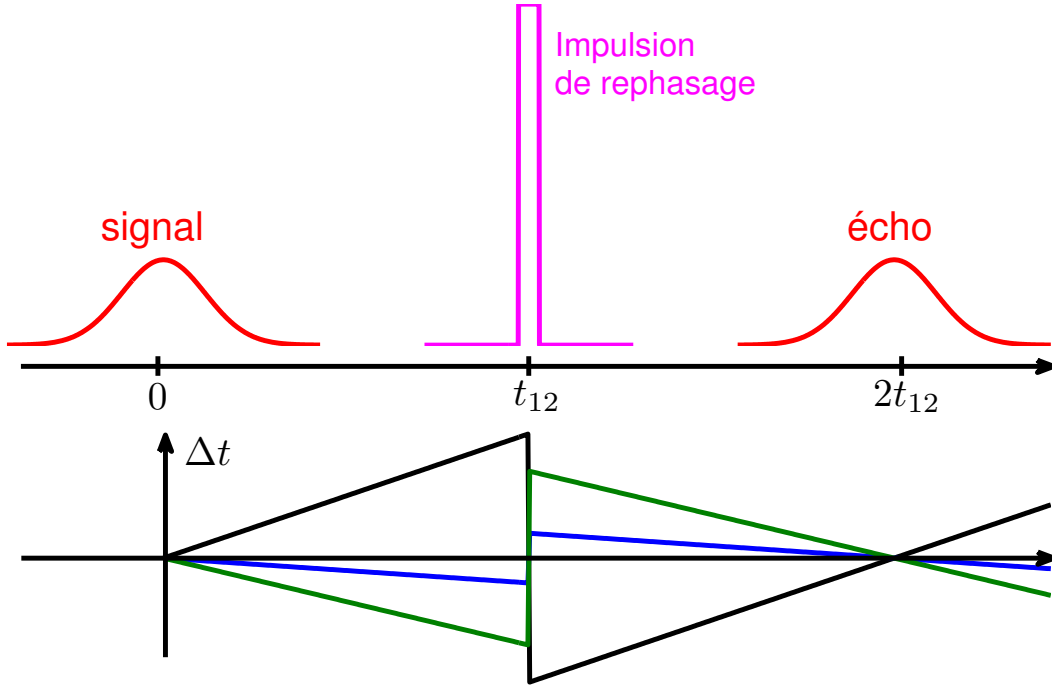


FIGURE 14 – En haut, schéma temporel d'une séquence d'écho de photon à deux impulsions (2PE). Le signal est une impulsion faible. L'impulsion de rephasage d'aire π permet le rephasage des cohérences pour produire l'écho. En bas, représentation de la phase accumulée par les cohérences $\exp(i\Delta t)$ pour trois désaccords différents.

La première impulsion signal d'aire faible, que l'on suppose cohérente est absorbée dans le milieu (voir A.3.2, eq. 50). Le signal noté $\mathcal{S}$ est directement enregistré dans les cohérences. On voit en effet que suite à la phase d'absorption, l'excitation des cohérences fait apparaître la transformée de Fourier du signal (eq. 54 avec $t \rightarrow +\infty$) :

$$r_{\text{signal}}(\Delta, z, t) = -i \exp(-i\Delta t) \tilde{\mathcal{S}}(z, \Delta) \quad (17)$$

Le terme $\exp(-i\Delta t)$ traduit l'oscillation libre des cohérences qui se déphasent où $-\Delta t$ est la phase inhomogène accumulée. L'application d'une impulsion π « renverse » cette évolution et génère un écho.

5.1.1 Efficacité de l'écho

On peut calculer l'efficacité d'émission de l'écho en suivant l'évolution des cohérences lors de la séquence de temps. Quelle est l'effet de l'impulsion π à l'instant t_{12} ? On peut montrer par une simple analyse géométrique sur la sphère de Bloch, qu'une impulsion π conjugue les cohérences :

$$r_{\text{signal}}(\Delta, z, t_{12}^+) = r_{\text{signal}}^*(\Delta, z, t_{12}^-) = i \exp(i\Delta t_{12}) \tilde{\mathcal{S}}^*(z, \Delta) \quad (18)$$

On suppose ici que l'impulsion de rephasage agit de façon uniforme sur toutes les cohérences excitées par le signal. Elle doit donc être très courte pour couvrir toute la bande passante du signal. Après le temps t_{12} , les cohérences continuent leur évolution libre en accumulant une phase $-\Delta(t - t_{12})$. On obtient

$$r_{\text{signal}}(\Delta, z, t > t_{12}) = i \exp(i\Delta(2t_{12} - t)) \tilde{\mathcal{S}}^*(z, \Delta) \quad (19)$$

Le terme $\exp(i\Delta(2t_{12} - t))$ représente le rephasage à l'instant $2t_{12}$. On peut maintenant se poser la question de l'équation de propagation de l'écho (noté $\mathcal{E}$). On peut sans difficulté adapter l'équation de propagation aux aires faibles (eq. 50) que suivait *stricto sensu* le signal pour obtenir celle de l'écho.

Avant cela, il faut se poser la question de l'état des populations au moment de l'émission de l'écho. Nous avons suivi la trace de l'évolution des cohérences après l'impulsion π . Les populations sont aussi modifiées. Elles sont en réalité inversées, car le signal ne les modifie pas au premier ordre (régime perturbatif). On peut résumer l'opération effectuée par l'impulsion par les formules suivantes :

$$\begin{aligned} r_{\text{signal}}(\Delta, z, t_{12}^+) &= r_{\text{signal}}^*(\Delta, z, t_{12}^-) \\ w(\Delta, z, t_{12}^+) &= -w(\Delta, z, t_{12}^-) = 1 \end{aligned} \quad (20)$$

La loi d'absorption de Bouguer-Beer-Lambert (eq. 50) fait apparaître un terme d'absorption. L'écho se propage dans un milieu aux populations inversées et subira donc un gain.

Ce n'est pas la seule modification de l'équation de propagation (eq. 50). En effet, cette dernière suppose que les cohérences ne sont pas excitées à l'avance. Ce n'est pas le cas à l'instant $2t_{12}$ puisque les cohérences produites par le signal sont présentes dans le milieu. Elles apparaissent comme un terme source pour l'équation de Maxwell (polarisation macroscopique).

$$\frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{\partial z} + \frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{c \partial t} = +\frac{\alpha}{2} \mathcal{E}(z, t) - \frac{i\alpha}{2\pi} \int_{\Delta} r_{\text{signal}} \quad (21)$$

On a supposé que l'élargissement inhomogène valait 1 sur la bande passante d'intérêt. On reconnaît dans le terme source la transformée de Fourier du signal que l'on suppose réel.

$$\frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{\partial z} + \frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{c \partial t} = +\frac{\alpha}{2} \mathcal{E}(z, t) - \alpha \mathcal{S}(z, 2t_{12} - t) \quad (22)$$

On peut négliger le terme en ∂t dans la résolution tant l'extension spatiale de l'impulsion est plus grande que la taille physique du milieu. On notera que l'écho est inversé temporellement par rapport au signal. Il s'agit d'une propriété connue du 2PE qui ne pose pas de problème en soi pour le stockage quantique. On définit alors l'efficacité comme le rapport en intensité de l'écho en sortie et du signal entrant ⁷.

$$\eta(\alpha L) = \left(\frac{\mathcal{E}(L, t)}{\mathcal{S}(0, 2t_{12} - t)} \right)^2 \quad (23)$$

Le signal suit une loi d'absorption $\mathcal{S}(L, 2t_{12} - t) = \mathcal{S}(0, 2t_{12} - t) \exp(-\alpha L/2)$. On résout alors l'équation différentielle (eq. 22) pour trouver l'efficacité de l'écho.

$$\eta(\alpha L) = [\exp(\alpha L/2) - \exp(-\alpha L/2)]^2 \quad (24)$$

Nous avons généralisé la solution analytique au cas d'une impulsion de rephasage d'aire quelconque [Ruggiero2009, voir Articles VII-E]. Les impulsions π assurent un rephasage total et optimisent l'efficacité. Ce calcul se place dans la droite ligne d'études plus anciennes sur les possibilités offertes par l'écho de photon pour faire du stockage de signaux lumineux classiques [Azadeh1998, Wang1998, Wang1999, Cornish2000]. Sa possible extension aux signaux quantiques a été abordée par Rostovtsev [Rostovtsev2002]. Il notait un peu maladroitement qu'il était possible d'obtenir un gain unité et de préserver la forme du signal après stockage. C'est vrai, mais une analyse des propriétés quantiques de l'écho est nécessaire.

5.1.2 Analyse

On voit que l'efficacité de l'écho (eq. 24) croît globalement comme une exponentielle à forte épaisseur optique. Elle peut dépasser l'unité. Il n'y a rien de surprenant à cela, car le milieu est inversé uniformément. L'écho une fois généré ne cesse d'être amplifié lors de sa propagation. Cette amplification fort pratique pour du stockage classique n'est pas acceptable pour conserver les propriétés quantiques en vertu du théorème de non-clonage. Le stockage ajoutera du bruit que l'on peut interpréter comme une amplification du bruit en entrée du milieu. Autrement dit, l'émission spontanée amplifiée viendra s'ajouter à l'écho et en dégradera les propriétés quantiques par rapport à celle du signal.

On peut montrer de façon fondamentale que si le signal ne contient qu'un photon alors le bruit typique sera aussi d'un photon émis spontanément dans le mode de

7. Les deux champs signal et écho ont la même forme temporelle. Le rapport qui définit l'efficacité est donc indépendant du temps.

l'écho [Ruggiero2009, voir Articles VII-E]. Un argument dont l'élégance n'a d'égale que la simplicité a été apportée par Christoph Simon [Ruggiero2009, voir Articles VII-E]. L'écho est produit par émission cohérente dans le milieu, il sera donc proportionnel au carré du nombre d'émetteurs. L'émission spontanée est incohérente. Son intensité sera proportionnelle au nombre d'émetteurs. Lorsqu'on stocke un photon, on excite un seul émetteur. Les émissions cohérente (écho) et incohérente (bruit) seront donc du même ordre de grandeur. On peut aussi développer un argument semi-classique en estimant le nombre de photons d'émission spontanée émis dans un angle solide et une bande passante donnée. On obtient un résultat similaire. On peut enfin de façon beaucoup plus rigoureuse calculer l'émission spontanée dans un milieu à gain à partir des équations de Bloch-Maxwell quantifiées [Gross1982, Jeffers1993, Ledingham2010, Sekatski2011] qui donne la réponse quelle que soit l'épaisseur optique.

Même si l'analyse théorique conclut à une impossibilité fondamentale, une vérification expérimentale reste digne d'intérêt. Peut-on observer des efficacités plus grandes qu'un ? Le milieu est-il effectivement inversé de façon homogène après le passage de l'impulsion π ? Est-il possible de mesurer le bruit d'émission spontanée ?

5.1.3 Expériences

Nous avons utilisé un cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ dopé à 0,5% comme pour la démonstration de 4.2.2. Ce matériau avait déjà été utilisé pour des études d'efficacité dans le contexte du stockage classique avec des contraintes différentes [Azadeh1998, Wang1999, Wang1998, Cornish2000, Tsang2003]. Un soin particulier a été mis pour calibrer la fréquence de Rabi. Nous utilisons pour cela la nutation optique, technique précise et bien établie [Allen1987, Sun2000]. J'en parlerai un peu plus loin (fig. 34). Une hypothèse importante du calcul précédent est l'uniformité de l'impulsion π sur l'ensemble des cohérences excitées par le signal. Comme on peut le voir sur la figure 15, l'impulsion π est plus courte que le signal ce qui assure un bon recouvrement spectral. Nous avons choisi pour le faisceau de rephasage un *waist* deux fois plus grand pour assurer le recouvrement spatial.

Si l'on compare l'amplitude du signal et celle de l'écho (fig. 15), on obtient une efficacité de 92%. Vu l'épaisseur optique du cristal ($\alpha L \sim 4$), on attend en réalité une efficacité de 5260% (eq. 24). Il y a deux raisons principales à ce désaccord.

D'une part, la durée totale de la séquence $\sim 50\mu\text{s}$ est comparable au temps de cohérence du matériau ($T_2 \sim 40\mu\text{s}$). La décroissance des cohérences n'est plus négligeable. On peut imaginer une réduction d'un facteur deux ou trois de l'efficacité.

D'autre part, la propagation de l'impulsion π même doit être prise en compte mais reste plus dur à quantifier. On voit sur la figure 15 que l'impulsion de rephasage est très déformée après son passage dans le milieu. Cette déformation est inévitable, car elle traduit l'inversion des populations qui grignote l'énergie de l'impulsion. On peut affiner l'analyse de la propagation en invoquant le théorème de l'aire [Allen1987, Ruggiero2009, Ruggiero2010] qui permet de prédire l'aire de l'impulsion en sortie. J'en parlerai plus précisément en 14.1. J'en résume la conclusion ici. Le théorème de l'aire (eq. A.4.2) complète parfaitement l'analyse énergétique. Les impulsions π sont singulières puisqu'elles conservent leur aire même si elles laissent un maximum d'énergie dans le milieu à cause de l'inversion de population. Ces deux points ne sont pas contra-

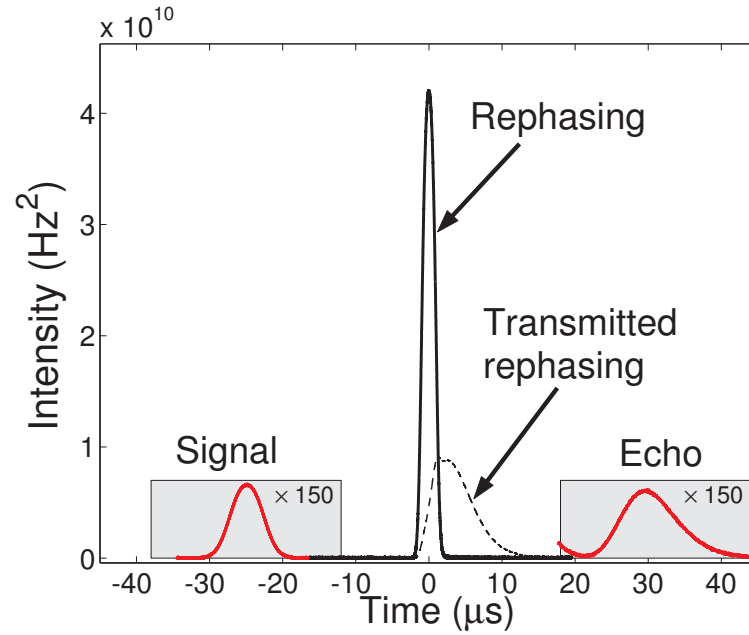


FIGURE 15 – Expérience de stockage par 2PE dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ [Ruggiero2009, voir Articles VII-E]. L'impulsion π est 2,5 fois plus courte que le signal. J'ai fait figurer en pointillés la déformation de l'impulsion de rephasage après son passage dans le milieu.

dictoires, mais imposent au contraire un très fort étirement de l'impulsion. Nous en avons fait une analyse spécifique indépendamment [Ruggiero2010, voir Articles VII-I]. Cette singularité de propagation des impulsions π impose largement le comportement de l'écho comme on peut le voir sur la figure 16.

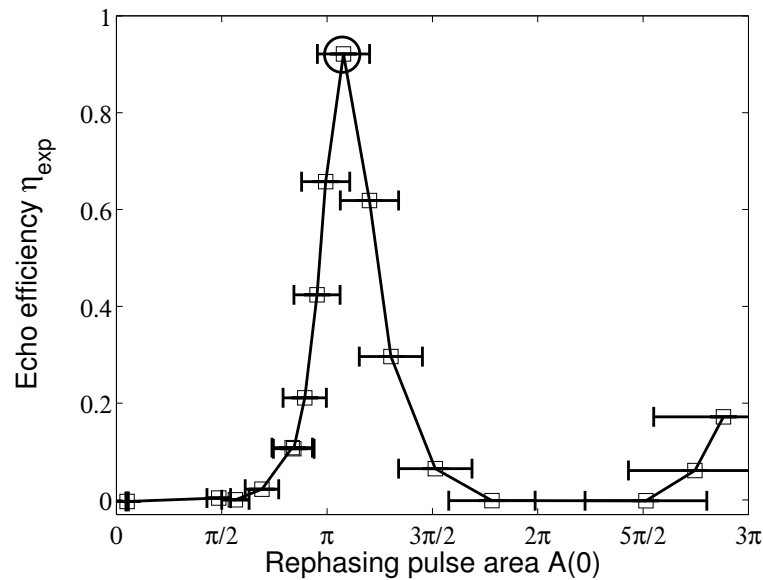


FIGURE 16 – Efficacité de l'écho de photon pour une aire variable de l'impulsion de rephasage [Ruggiero2009, voir Articles VII-E]. Pour π , on observe une efficacité de 92% (cercle) qui correspond à la figure 15. On retrouve comme attendu un maximum moins prononcé autour de 3π .

Même si le maximum d'efficacité de 92% est bien inférieur à l'attente théorique, la forme globale de la courbe est bien prédite. Le caractère très piqué de la courbe autour de π traduit la singularité de propagation de ces impulsions [Ruggiero2010, voir Articles VII-I]. Ceci reste vrai même si le milieu n'est pas inversé de façon uniforme spectralement à cause de l'étirement de l'impulsion.

Est-il malgré tout possible de refaire l'expérience de la figure 15 en régime de comptage de photon ? La réponse est résolument non. Le bruit d'émission spontanée qui représente une limite fondamentale n'est pas un problème pour la mesure en elle-même. L'étirement de l'impulsion π va en effet aveugler le détecteur bien avant. L'impulsion de rephasage est tellement étirée qu'elle vient « lécher » l'écho comme on peut le voir sur la figure 15. Cet aspect-là est rédhibitoire si l'on souhaite effectuer des mesures à faible niveau de photons.

Il est clair que l'écho de photon tel quel n'est pas utilisable pour du stockage quantique. Je vais maintenant décrire deux alternatives qui s'en inspirent, mais évitent les limites imposées par l'inversion de population d'une part et la propagation des impulsions π d'autre part.

5.2 Le protocole Controlled Reversible Inhomogeneous Broadening

Le protocole CRIB [Nilsson2005, Moiseev2001, Alexander2006, Kraus2006] tout en s'inspirant du 2PE permet d'en éviter l'écueil. Il faut souligner dans ce domaine le travail de M. Sellars qui fut et reste moteur pour la conception [Alexander2006] et la réalisation expérimentale [Hedges2010] du CRIB.

L'idée est simple. L'impulsion π permet le rephasage des cohérences, mais induit une inversion de population rédhibitoire. Le CRIB consiste à effectuer le rephasage sans impulsion π . Il n'y aura ni inversion de population ni risque pour le détecteur d'être aveuglé par une impulsion puissante. Comme son nom l'indique, ceci est possible si on contrôle le désaccord des cohérences dans l'élargissement inhomogène. On cherche par opposition à l'écho de photon (eq. 20) à réaliser directement l'opération $\Delta \rightarrow -\Delta$ à l'instant t_{12} sans inverser les populations. On obtiendra un rephasage des cohérences à $2t_{12}$.

On produit ainsi un écho par contrôle de l'élargissement inhomogène. C'est bien plus facile à dire qu'à faire. L'élargissement inhomogène naturel est produit par des distorsions microscopiques de la maille cristalline qui déplacent les raies par interaction coulombienne. Il n'est pas contrôlable de façon dynamique. Dans le protocole [Alexander2006], on propose d'utiliser l'effet Stark statique pour maîtriser les désaccords de chaque dipôle. On suppose être capable de préparer initialement une raie homogène artificielle par pompage optique (SHB). On applique ensuite au moyen d'électrodes un champ électrique statique qui élargit la raie de façon inhomogène et contrôlable.

En fonction de la réponse Stark du milieu, on doit distinguer deux configurations de CRIB, transverse ou longitudinal.

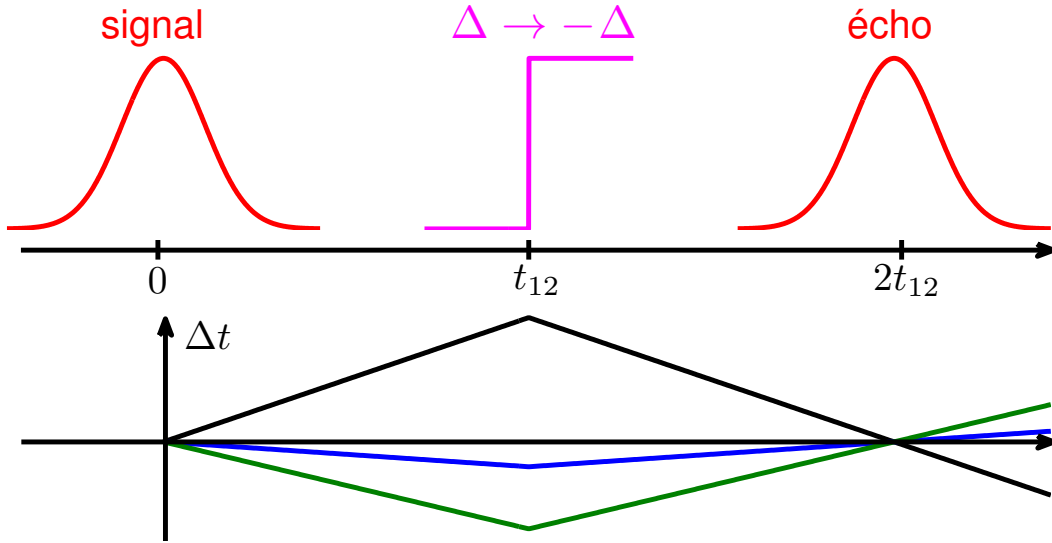


FIGURE 17 – En haut, schéma temporel d’une séquence de CRIB. Le contrôle dynamique du désaccord Δ assure le rephasage des cohérences. En bas, représentation de la phase accumulée par les cohérences $\exp(i\Delta t_{12})$ pour trois désaccords différents à comparer à la figure 14.

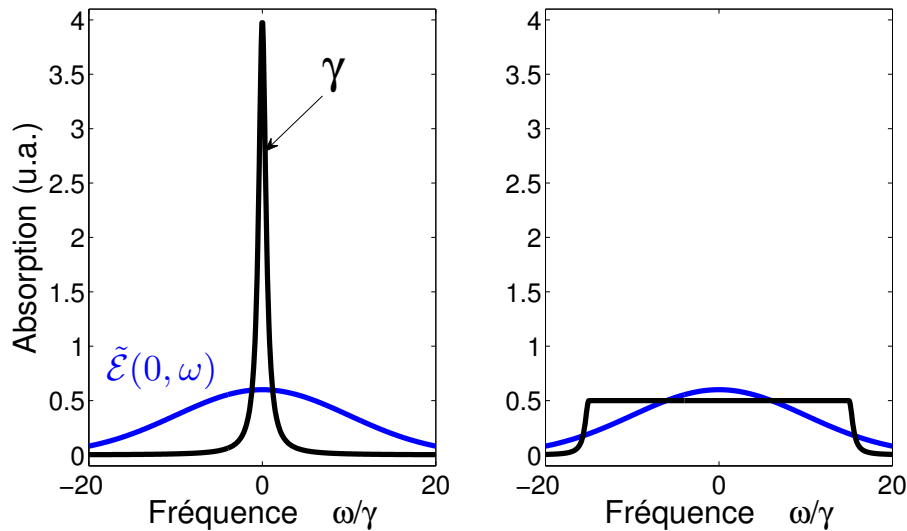


FIGURE 18 – Élargissement (à droite) par effet Stark statique d’une raie homogène (à gauche) par application d’un champ électrique inhomogène spatialement. La bande d’absorption après élargissement doit couvrir le spectre incident. La réduction de l’absorption au centre est proportionnelle au facteur d’élargissement de la raie, l’aire sous la courbe est conservée.

5.2.1 Le CRIB transverse

C’est la situation la plus proche de l’écho de photon. On suppose ici que l’élargissement Stark (fig. 18) est obtenu en chaque point ou en chaque tranche dz du milieu. La raie est élargie de façon uniforme le long de z (voir fig. 19 pour une représentation

schématique).

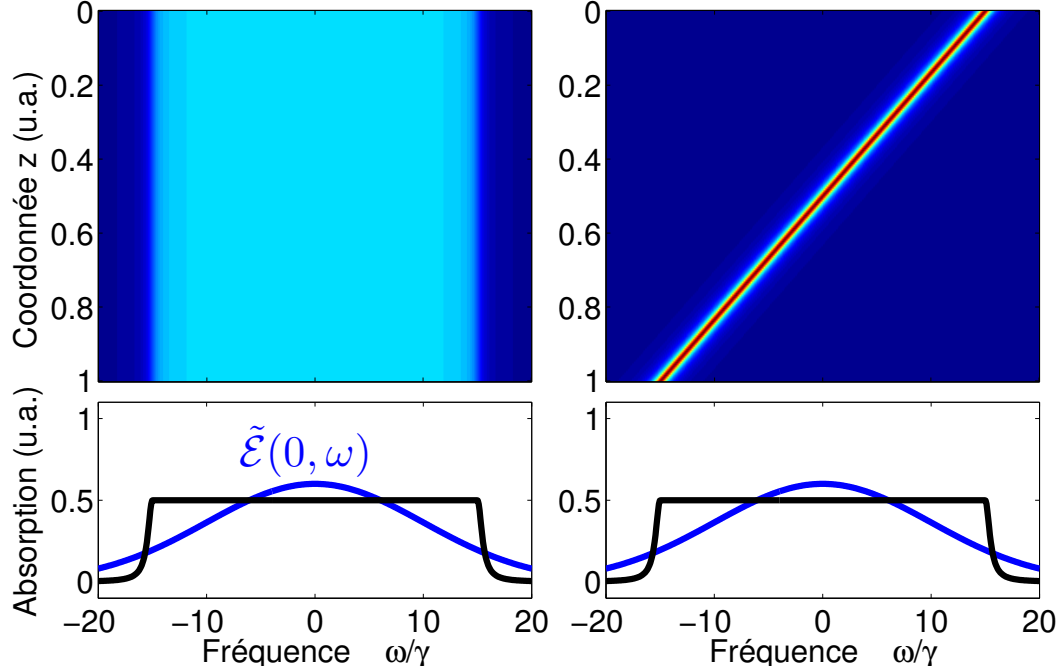


FIGURE 19 – Différence entre le CRIB transverse (à gauche) et longitudinal (à droite). Pour le CRIB transverse, l'élargissement de la raie se produit pour chaque tranche dz du milieu). Pour le CRIB longitudinal, la raie n'est pas élargie, mais elle est décalée en fonction de la profondeur z du milieu. Dans les deux cas, le spectre de transmission intégré (en bas) est le même et fait apparaître une transition élargie.

Cette situation n'est pas commune dans les cristaux dopés terre rare. Le dipôle électrique quand il existe une orientation bien définie dans la maille cristalline. Dans ce cas, l'application d'un champ électrique induit un décalage de la raie et non pas un élargissement. C'est en revanche le cas pour des verres dopés où l'orientation locale des dipôles est aléatoire. L'application d'un champ électrique uniforme (électrodes déposées sur le matériau) induit un élargissement de la raie [Hastings-Simon2006]. Il suffit alors de basculer la tension des électrodes pour réaliser l'opération $\Delta \rightarrow -\Delta$. On est bien dans la situation du CRIB transverse.

On peut reprendre l'analyse de la partie 5.1.1 pour calculer l'efficacité. Le basculement du champ électrique réalise pour la cohérence la transformation locale :

$$r_{\text{signal}}(\Delta, z, t_{12}^+) = r_{\text{signal}}(-\Delta, z, t_{12}^-) \quad (25)$$

La population est inchangée ce qui est la grande force du protocole : $w(\Delta, z, t_{12}^+) = w(\Delta, z, t_{12}^-) = -1$. On obtient une équation de propagation analogue à l'eq.22 avec pour différence majeure, un terme d'absorption en $-\frac{\alpha}{2}$ qui traduit l'absence d'inversion de population.

$$\frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{\partial z} + \frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{c \partial t} = -\frac{\alpha}{2} \mathcal{E}(z, t) + \alpha \mathcal{S}(z, 2t_{12} - t) \quad (26)$$

On la résout sans peine pour obtenir l'efficacité définie par l'eq.23 :

$$\eta(\alpha L) = (\alpha L)^2 \exp(-\alpha L) \quad (27)$$

L'efficacité est maximale $\alpha L = 2$ et vaut 54%. Ensuite elle décroît à forte épaisseur optique. Cela n'a rien d'étonnant puisque la réémission de l'écho demande un compromis pour l'épaisseur optique. Il faut qu'elle soit suffisamment grande pour que le signal soit absorbé complètement. Mais elle ne doit pas être trop importante sinon l'écho est réabsorbé. Le CRIB vers l'avant n'est pas efficace à 100% mais est exempt de bruit dû à l'émission spontanée ou à la présence d'une impulsion forte dans la séquence temporelle.

Il est possible d'imposer une réémission de l'écho vers l'arrière pour obtenir une efficacité de 100%. Pour ce faire, il est nécessaire de pouvoir appliquer des impulsions Raman pour convertir la cohérence optique en cohérence de spin comme nous l'avons vu à plusieurs reprises (voir par ex. 4.2.2 avec la figure 8 pour le schéma de principe). On applique deux impulsions Raman contra-propagatives [Alexander2006]. Cela a deux avantages. D'une part, on allonge significativement le temps de stockage en exploitant la longue durée de vie du spin. D'autre part, on modifie la condition d'accord de phase de réémission de l'écho. L'accord de phase n'est plus réalisé vers l'avant, mais vers l'arrière à cause du facteur $\exp(2kz)$ qu'impose les deux impulsions Raman. On peut alors écrire l'équation de propagation du mode vers l'arrière, peu différente de l'eq. 26 :

$$-\frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{\partial z} + \frac{\partial \mathcal{E}(z, t)}{c \partial t} = -\frac{\alpha}{2} \mathcal{E}(z, t) + \alpha \mathcal{S}(z, 2t_{12} - t) \quad (28)$$

On la résout pour le mode vers l'arrière avec la condition aux limites $\mathcal{E}(L, t) = 0$ afin de calculer l'intensité de l'écho sortant en $\mathcal{E}(0, t)$. On trouve ainsi l'efficacité :

$$\eta(\alpha L) = [1 - \exp(-\alpha L)]^2 \quad (29)$$

L'efficacité atteint 100% pour une épaisseur optique suffisamment importante. Il n'y a pas de problème de réabsorption dans ce cas, car l'écho se propage vers l'arrière et retransverse la partie du milieu (de taille $1/\alpha$) dont le rephasage de cohérence lui redonne de façon cohérente l'énergie que contenait le signal entrant.

L'application d'impulsion Raman n'est pas toujours possible si un niveau de spin n'est pas disponible et reste une complication expérimentale. Une alternative remarquable a été proposée par M. Sellars [Alexander2006].

5.2.2 Le CRIB longitudinal ou Gradient Echo Memory

L'apport majeur du CRIB longitudinal appelé aussi Gradient Echo Memory (GEM) [Hétet2008b] est la possibilité d'obtenir une efficacité de 100% vers l'avant (sans transfert Raman). Contrairement au CRIB transverse où on applique un champ électrique

uniforme et on s'appuie sur l'orientation aléatoire des dipôles électriques pour obtenir l'élargissement de la raie, on utilise maintenant un gradient spatial de champ électrique. Dans les cristaux dopés où l'orientation du dipôle est bien définie dans la maille, on obtient un décalage de fréquence qui dépend de la profondeur dans le milieu. Comme on peut le voir sur la figure 19 (à droite), la transmission intégrée du milieu est la même que pour le CRIB transverse, mais dans le cas longitudinal il y a une relation entre le décalage de fréquence et la position. On ne peut pas établir d'équation de propagation du type eq.26. La résolution est plus complexe mais la possibilité d'obtenir, une efficacité de 100% a été démontrée [Longdell2008]. Cette configuration reste plus accessible avec des cristaux dopés. Des électrodes en configuration quadrupolaire suffisent alors. Elle fut à l'origine d'une démonstration éclatante à forte efficacité (69%), le caractère quantique du champ étant vérifié en sortie [Hedges2010].

Il faut souligner que le GEM est aussi un protocole phare dans les vapeurs atomiques [Hétet2008a, Hosseini2009, Buchler2010, Sparkes2010, Hosseini2011a, Hosseini2012, Glorieux2012, Higginbottom2012, Sparkes2012] avec une efficacité record tous systèmes confondus de 87% [Hosseini2011b]. Cette production impressionnante traduit bien la maîtrise du groupe de P.K. Lam et B. Buchler. On utilise ici l'absorption Raman qui permet de considérer l'atome comme un système à deux niveaux effectif de longue durée de vie. L'élargissement de la raie est obtenu par effet Zeeman et non par effet Stark. Le principe et la description restent les mêmes.

5.2.3 Le CRIB était presque parfait

Malgré des résultats remarquables [Hedges2010], le CRIB reste délicat à mettre en œuvre. Une limite intrinsèque pour les cristaux dopés est qu'il n'est applicable qu'aux composés où l'effet Stark existe. Ce n'est pas toujours le cas pour des raisons de symétrie cristalline comme pour $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Même si j'ai très peu parlé de la phase préparatoire qui consiste à créer une raie homogène artificielle par SHB, elle peut être une difficulté expérimentale majeure. Par exemple, $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ dont les propriétés de cohérence sont excellentes et dont la longueur d'onde est directement compatible par la bande télécoms ne possède pas de niveaux de réserve où on puisse accumuler les populations par pompage optique [Böttger2006]. Les sous-niveaux Zeeman utilisés pour le SHB n'ont pas une durée de vie suffisante pour tailler une raie artificielle suffisamment absorbante et réaliser le CRIB de façon efficace [Lauritzen2010].

On voit aussi poindre une limite fondamentale du protocole. Partant d'une raie homogène que l'on élargit ensuite, il est nécessaire de disposer d'une absorption considérable pour garder ensuite une absorption non négligeable après élargissement. La préparation par pompage optique en est d'autant plus délicate. C'est le tour de force pourtant réalisé par Hedges *et al.* [Hedges2010]. On exploite finalement mal l'épaisseur optique initiale que l'on sacrifie au prix de la bande passante.

Malgré ces limites, le CRIB, comparé à l'écho de photon, est particulièrement éclairant, car il en résout les problèmes. Il perd cependant quelques avantages par rapport à son ancêtre, ce dernier ne nécessitant aucune préparation préalable. Nous avons donc très récemment décidé de reconsidérer l'écho de photon sous un angle nouveau.

5.3 Revival Of Silenced Echo : le retour de l'écho de photon

Conscients des limites du CRIB, nous avons repris le 2PE pour le rendre compatible avec les besoins d'une mémoire quantique [Damon2011, voir Articles VII-F].

5.3.1 Principe du ROSE

Nous avons vu que l'inversion de population était rédhibitoire pour le 2PE. Il s'agit d'une limite fondamentale qu'il faut résoudre en premier lieu. Nous avons donc proposé le protocole Revival of Silenced Echo (ROSE)[Damon2011, voir Articles VII-F]. Nous verrons aussi que malgré l'utilisation d'impulsions de forte intensité, le ROSE permet d'isoler les modes du signal et des impulsions de rephasage.

Le ROSE se compose comme une double séquence de 2PE (fig. 20).

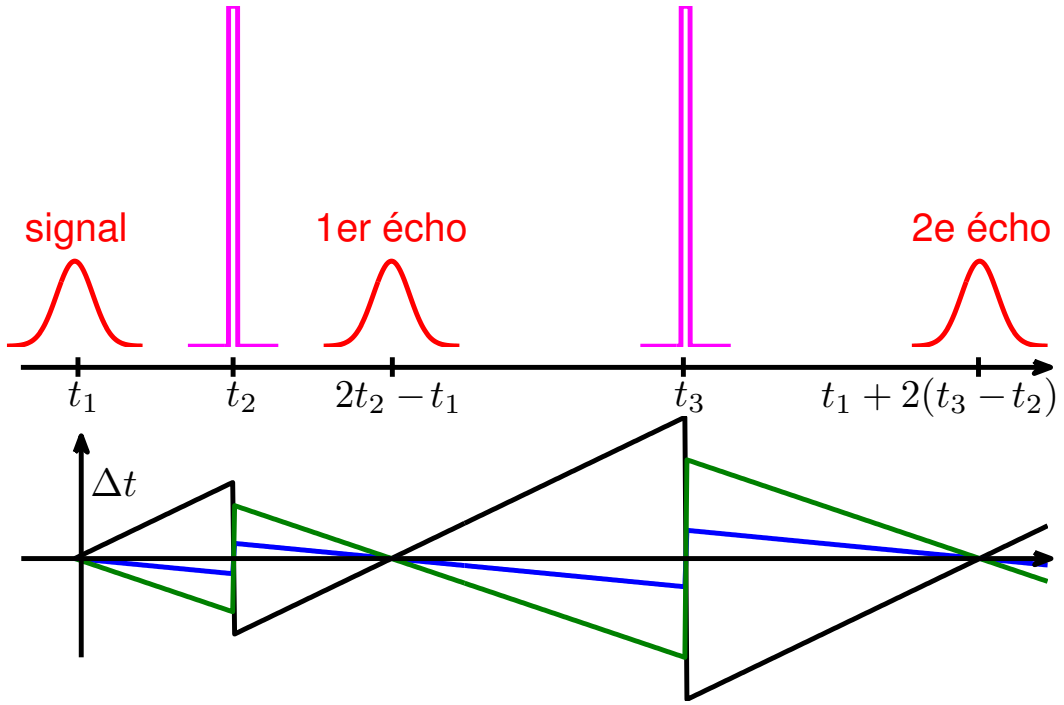


FIGURE 20 – En haut, schéma temporel d'une séquence de ROSE. L'application d'une 2ème impulsion π permet de générer un 2ème écho alors que le milieu n'est plus inversé. En bas, représentation de la phase accumulée par les cohérences. Chaque rephasage des cohérences peut générer un écho respectivement au temps $2t_2 - t_1$ et $t_1 + 2(t_3 - t_2)$ si t_1 désigne l'arrivée du signal et t_2, t_3 les deux impulsions π . Le 1er écho est « symétrique » du signal par rapport à la première impulsion π . Le second écho est « symétrique » du premier par rapport à la deuxième impulsion π .

Partant d'une séquence de 2PE, on peut appliquer une seconde impulsion π . Cette dernière produit un 2ème écho lorsque le 1er écho n'a pas emporté toute l'excitation présente dans le milieu. C'est généralement le cas en pratique, on observe alors en quelque sorte un « écho d'écho ». Le premier écho est clairement émis dans un milieu inversé. Ce n'est pas le cas du second. Ce schéma tel quel n'est pas acceptable pour

une mémoire quantique. On ne peut imaginer que le signal soit réémis à la fois sous forme d'un premier écho bruité et d'un second parfaitement fidèle. En effet, le 1er écho laissera une trace de son passage dans les cohérences et induira un bruit sur le second. Ce schéma n'est acceptable que si l'émission du 1er écho est empêchée alors que le second est autorisé. C'est l'idée du protocole ROSE : un seul écho est émis (le second) dans un milieu non inversé (niveau fondamental).

Une avancée cruciale dans cette direction a été proposée par J. Longdell [McAuslan2011b]. Il propose à l'image du CRIB, d'utiliser des champs électriques pour empêcher l'émission du 1er écho. Ce fut une source d'inspiration importante dans notre groupe. Nous avons alors proposé d'utiliser la condition d'accord de phase spatiale ce qui ouvre le protocole aux matériaux insensibles à l'effet Stark.

Alors que l'on a écrit les instants d'arrivée des deux échos $2t_2 - t_1$ et $t_1 + 2(t_3 - t_2)$ (fig. 20) respectivement, il n'est pas difficile d'écrire la condition d'accord de phase spatial par analogie avec l'instant d'émission qui traduit l'accord de phase temporel. Le 1er écho doit être émis avec comme vecteur d'onde $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ ($\vec{k}_1$ désigne le vecteur d'onde du signal et $\vec{k}_2, \vec{k}_3$ celui des deux impulsions π). Pour le second écho se sera $\vec{k}_1 + 2(\vec{k}_3 - \vec{k}_2)$. On voit que les deux échos ont des conditions d'accord de phase différentes. On cherche donc une configuration qui n'assure pas la 1re, mais assure la seconde. Pour la première, il suffit de prendre $\vec{k}_1 \neq \vec{k}_2$ (angle entre les faisceaux). On aura facilement $|2\vec{k}_2 - \vec{k}_1| \gg 2\pi/\lambda$. Pour un milieu suffisamment long, il n'y a donc pas d'émission à l'instant $2t_2 - t_1$. Les cohérences, empêchées d'émettre, se déphasent à nouveau (fig. 20) jusqu'au prochain rephasage à l'instant $t_1 + 2(t_3 - t_2)$. On impose par exemple maintenant $\vec{k}_3 = \vec{k}_2$. On voit alors que la condition d'accord est satisfaite : le second écho est émis dans le mode $\vec{k}_1$. L'extinction du premier écho tout en préservant le second donne son nom au protocole ROSE.

L'efficacité dans ce cas est la même que pour le CRIB transverse (eq. 27). Il n'y a alors plus de différence formelle, car un écho produit par CRIB ou ROSE est le produit du rephasage dans un milieu non inversé. L'efficacité plafonne pour $\alpha L = 2$ à 54%.

La configuration $\vec{k}_1 \neq \vec{k}_2$ et $\vec{k}_3 = \vec{k}_2$ est simple, car elle nécessite deux faisceaux seulement. L'une portera le signal, l'autre les deux impulsions π . Les deux faisceaux peuvent être co-propagatifs séparés par un petit angle (voir 5.3.2) ou contra-propagatifs (voir 5.3.3).

La séparation spatiale des faisceaux signal et impulsions π permet de résoudre un second inconvénient majeur du 2PE. Pour ce dernier, la condition d'accord de phase impose que le signal et l'impulsion forte soient portés par le même faisceau. L'étirement de l'impulsion π lors de sa propagation submerge rapidement l'écho. Le ROSE permet d'éviter cet écueil.

Nous avons par ailleurs choisi de ne pas utiliser des impulsions π monochromatiques. Nous préférons, inspirés par la RMN, appliquer des inversions adiabatiques. On utilise en effet des impulsions chirpées appelées sécantes hyperboliques complexes (SHC) [de Seze2005, Lauro2011]. Elles produisent un rephasage lorsqu'elles sont appliquées par paire comme c'est le cas pour le ROSE. J'en parlerai plus spécifiquement en 14.2. Une seule impulsion SHC n'induit pas de rephasage car le *chirp* ajoute une phase inhomogène supplémentaire. Une seconde SHC compense exactement ce déphasage. Les SHC effectuent des passages adiabatiques rapides. Elles sont plus robustes vis-à-vis des conditions

expérimentales (fluctuations de puissance et effet de propagation par exemple, voir 14.2). Il est aussi possible de déclencher la réémission vers l'arrière en imposant cette fois la configuration $\vec{k}_1 + \vec{k}_3 - \vec{k}_2 = 0$. On obtiendrais alors une efficacité de 100% [Damon2011, voir Articles VII-F].

Notre proposition théorique est séduisante, car elle semble prendre le meilleur de l'écho de photon et du CRIB. L'utilisation d'impulsion forte revient malgré tout à jouer avec le feu lorsqu'on envisage le niveau de détection du photon unique. Nous avons donc entamé une étude expérimentale qui vise à évaluer la faisabilité du protocole avec peu de photons par impulsion signal.

5.3.2 Réalisations expérimentales du ROSE

Afin de valider notre approche, nous avons réalisé deux expériences de vérification l'une dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ et l'autre dans $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$. On a vu par ailleurs que le CRIB restait difficile à mettre en œuvre dans $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$, le ROSE constituant une alternative séduisante.

On voit sur la figure 21 qu'il est possible de produire un écho ROSE dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ (dopés à 0,5%) après deux impulsions de rephasage sans pour autant avoir d'écho après la première impulsion [Damon2011, voir Articles VII-F].

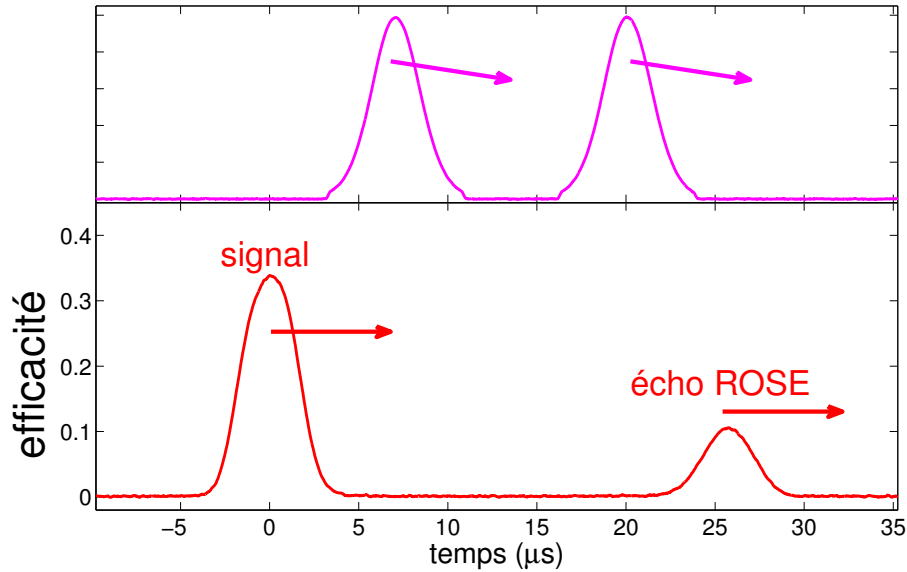


FIGURE 21 – Séquence temporelle de ROSE dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. En bas, le signal et l'écho recueillis en transmission. Le signal n'est pas totalement absorbé ($\alpha L \sim 1$). L'efficacité de l'écho est de l'ordre de 10%. En haut, les deux impulsions de rephasage SHC dont le faisceau fait un petit angle ($\sim 2^\circ$) par rapport au faisceau du signal et de l'écho (on a schématisé cette petite différence d'angle par des flèches inclinées).

L'efficacité est modérée de l'ordre de 10%. Une source importante de décroissance est la décohérence dont le temps caractéristique est comparable au temps de stockage ($T_2 \sim 40\mu s$, voir 5.1.3).

Nous avons pu observer par des mesures d'absorption indépendantes que l'efficacité

d'inversion des SHC n'était pas parfaite ($\sim 80\%$ au maximum). Le rephasage après les deux impulsions sera donc incomplet ce qui peut réduire l'efficacité. Mais cela pose surtout le problème du bruit d'émission spontanée puisque les inversions ne sont pas complètes. C'est l'objectif de l'étude expérimentale 5.3.3 qui suit.

Des résultats très similaires ont été obtenus dans $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ [Damon2011, voir Articles VII-F]. C'est clairement un avantage du ROSE même si le bruit au niveau de quelques photons doit encore être évalué.

5.3.3 Étude du bruit

Nous avons remplacé ici les photodiodes détectrices par des modules de comptage de photons. Cette étude n'est rendue possible que par la séparation des modes spatiaux. On doit pouvoir s'affranchir du bruit de pollution que représentent les impulsions SHC. On a donc choisi une configuration quasi contra-propagative ($\sim 180^\circ$) ce qui doit assurer une bonne isolation des modes.

Reste maintenant à déterminer le bruit d'émission spontanée. Si les inversions adiabatiques sont incomplètes alors le milieu restera partiellement inversé.

L'expérience est réalisée dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Les modules de comptage sont particulièrement efficaces à cette longueur d'onde. Le signal ne contient que 15 photons/impulsion au niveau du cristal [Chanelière2012]. On observe un bruit important sur la figure 22.

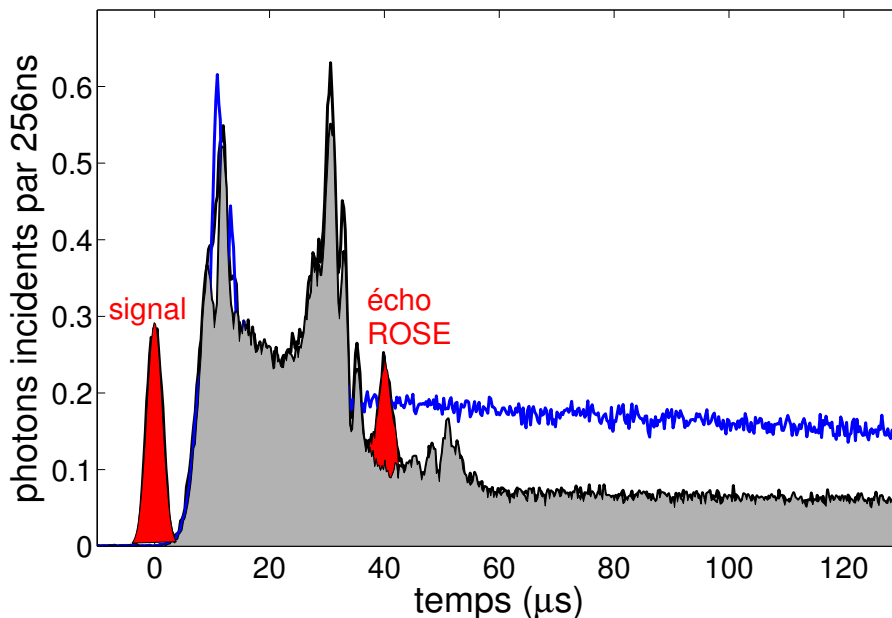


FIGURE 22 – Expérience de ROSE lorsque le signal ne contient que 15 photons/impulsion au niveau du cristal ($\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$). La zone grisée représente le bruit (enregistré en l'absence de signal). En rouge, on observe le signal pas complètement absorbé ainsi que l'écho (analogue à la fig. 21). On a fait figurer en bleu le bruit lorsqu'on applique uniquement la première impulsion SHC.

Le nombre de photons incidents est calculé à partir du nombre détecté puis en me-

surant indépendamment l'efficacité de collection-détection. Avec 15 photons dans l'impulsion signal, on observe clairement l'écho sur un fond de bruit significatif (le rapport écho/bruit est ici de l'ordre de 1). Ce dernier a deux origines.

On voit d'une part une fuite des impulsions SHC vers le mode du signal pour produire un amas important entre 0 et $40\mu s$. Pour augmenter l'isolation, nous avons utilisé pour cette expérience des polarisations croisées pour le signal et les impulsions de rephasage. Cela n'est pas suffisant. Les impulsions fortes contiennent typiquement 10^{15} photons. Des réflexions résiduelles sur les fenêtres du cryostat, sur les faces du cristal ou des impuretés diffusantes à l'intérieur de l'échantillon peuvent expliquer une isolation imparfaite.

D'autre part, on observe clairement un fond d'émission spontanée qui décroît lentement aux temps longs ($\sim 500\mu s$). Le résidu d'émission spontanée est dû à l'imperfection des inversions déjà mentionnée ($\sim 80\%$). Si on applique une seule impulsion SHC, on mesure un fond d'émission spontanée important (en bleu sur la fig. 22). La deuxième impulsion remet partiellement la population dans le fondamental. La comparaison des niveaux noir et bleu, dans un rapport de l'ordre de $1/3$, est ici cohérente avec qualité de l'inversion simple ($\sim 80\%$) et de la double ($\sim 1 - (80\%)^2 = 0,36$).

Un travail important reste donc à faire pour pousser le protocole au niveau du photon unique. La qualité d'inversion d'une impulsion SHC doit être mieux maîtrisée pour réduire le fond d'émission spontanée qui est la source de bruit dominante à l'heure actuelle. La limite de $\sim 80\%$ est mal comprise à partir des simulations numériques de la propagation. Il s'agit d'un enjeu fondamental même si l'objectif à court terme est de faire cette vérification en priorité sur $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ pour sa compatibilité unique avec la bande télécom.

Le ROSE conclut cette partie descriptive des protocoles de stockage dont la parenté à l'écho de photon est maintenant évidente. J'avais laissé de côté le protocole Atomic Frequency Comb. J'ai souhaité le traiter à part, car sa parenté avec l'écho de photon n'est que très superficielle, ce qui fut historiquement une source de confusion lors de son analyse.

6 Le protocole Atomic Frequency Comb, l'inclassable ?

Le protocole AFC proposé par M. Afzelius [Afzelius2009] suppose une préparation spectrale initiale. On suppose en effet que le milieu présente une absorption périodique constituée de pics fins (peigne atomique). Le signal incident couvrira plusieurs pics (voir fig. 23).

La figure 23 nous fait largement penser à la continuité des différentes situations décrites en 4 où l'on a finalement considéré une ou deux résonances excitées hors résonance et/ou large bande par le signal. C'est précisément le message de cette partie qui prend un point de vue contre-historique. Pourtant, l'image d'un réseau spectral périodique qui diffracte dans le domaine temporel pour produire un écho nous ramène à l'écho de photon (voir partie 5) comme référence [Afzelius2009].

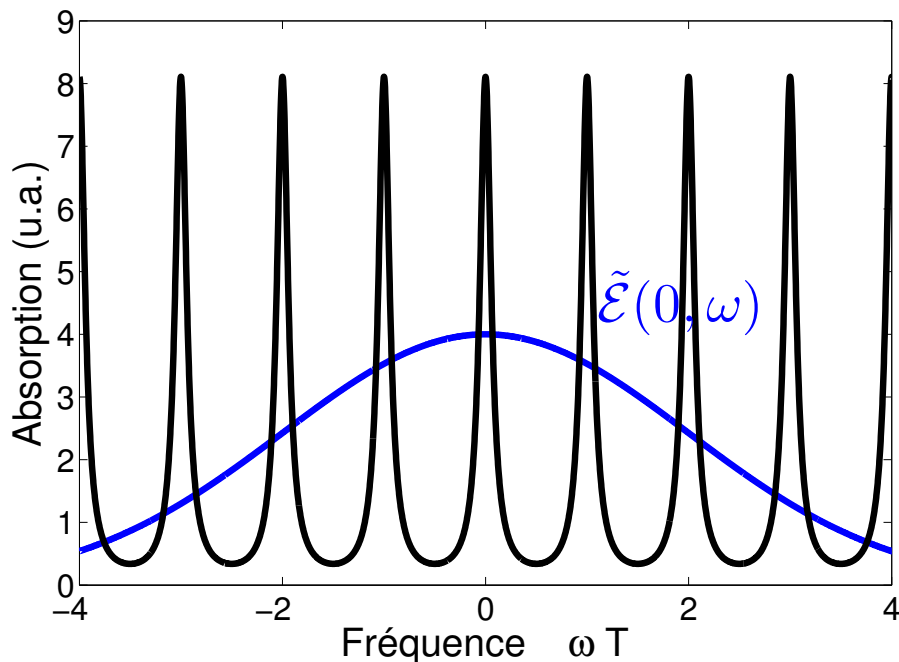


FIGURE 23 – L’AFC considère la diffraction spectrale du signal par un peigne en absorption initialement préparé. La diffraction produit un écho dans le domaine temporel par analogie avec un réseau spatial.

6.1 L’AFC, le fils prodige de l’écho à trois impulsions

La référence à l’écho de photon à trois impulsions (3PE) est inévitable. On l’interprète généralement (fig. 24) comme la diffraction de la 3e impulsion sur un réseau préparé par les deux premières impulsions.

Les deux premières impulsions gravent un réseau généralement peu contrasté (modulation sinusoïdale). L’efficacité de diffraction est alors faible (quelques %). On peut ainsi voir l’AFC comme une situation extrême de modulation de l’absorption. On remplace le faible contraste par un peigne très absorbant dans les pics et parfaitement transparent entre. L’efficacité est alors bien meilleure (54%). Il faut souligner les travaux pionniers effectués auparavant dans le domaine de l’holographie spectrotemporelle. Sõnalg a dérivé par exemple dès 1994 les grandes lignes d’optimisation de l’efficacité [Sõnalg1994]. L’AFC ne se résume cependant pas à un super écho à 3 impulsions. La diffraction dans le domaine temporel (fig. 23) n’est pas vraiment un protocole de stockage puisque le retard est préinscrit dans le matériau par la période $1/T$ du réseau. M. Afzelius propose [Afzelius2009] d’interrompre la séquence entre t_3 et $t_3 + T$ par un transfert Raman (comme décrit sur la figure 8). Cela a un triple avantage. D’une part, on réalise une réémission à la demande contrairement à la situation à deux niveaux où le retard est préenregistré. D’autre part, le temps de stockage est alors limité par la durée de vie de la cohérence Raman potentiellement longue. Et enfin, en utilisant des faisceaux Raman contra-propagatifs, on déclenche la réémission vers l’arrière. Comme pour le CRIB transverse 5.2, l’efficacité théorique est de 100%.

La possibilité d’un transfert Raman a été démontrée [Afzelius2010b] pour étendre le temps de stockage, mais en configuration co-propagative (l’efficacité reste limitée à

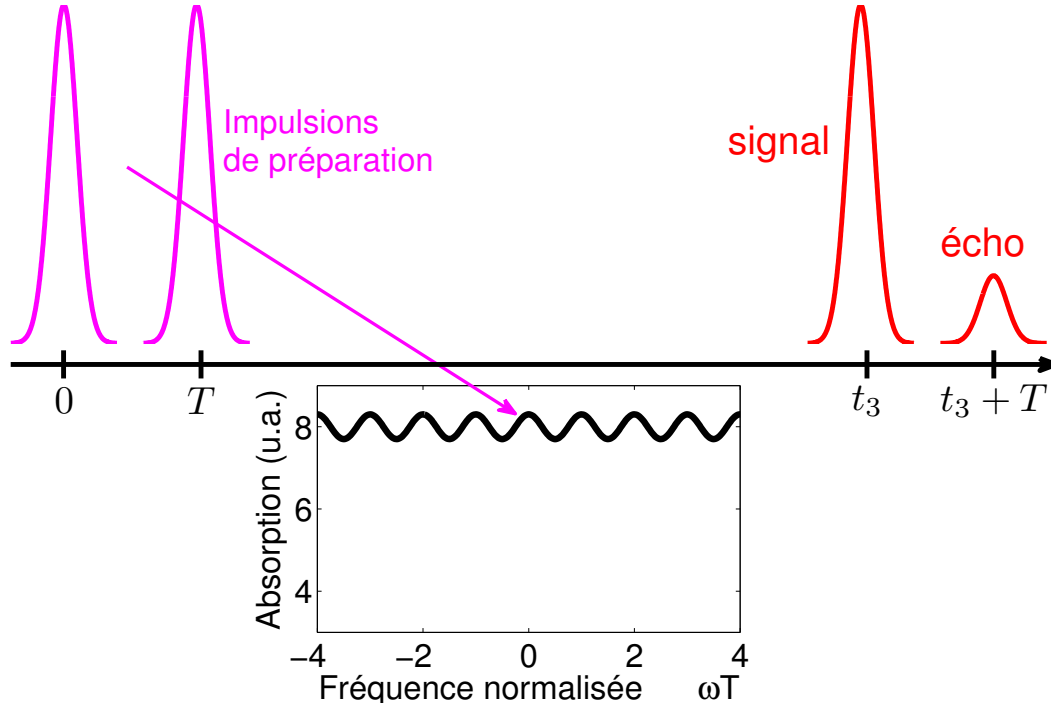


FIGURE 24 – En haut, séquence d'écho à trois impulsions (3PE). Les deux premières impulsions créent un réseau spectral par pompage optique. Le temps t_3 peut être long tant que la structure spectrale survit (durée de vie des populations). Le signal est diffracté à l'instant t_3 dans le domaine temporel pour produire un écho à l'instant $t_3 + T$. En bas, profil d'absorption modulé suite au passage des deux impulsions de préparation.

54%).

Il est difficile de rendre compte du foisonnement expérimental récent autour de ce protocole. La plupart des démonstrations impliquent des systèmes à deux niveaux. Il s'agit de la version la plus rudimentaire de l'AFC avec retard prédéterminé. Les réalisations les plus marquantes se font au niveau du photon unique (laser atténué) [de Riedmatten2008, Chanelière2010b, Clausen2012, Gündoğan2012, Zhou2012] ou encore mieux avec des sources non classiques (fluorescence paramétrique) [Clausen2011, Saglamyurek2011]. De notre côté, nous avons porté notre attention sur la phase de préparation qui reste cruciale pour optimiser les performances du protocole en terme d'efficacité et de bande-passante [Chanelière2010b, Bonarota2010, Bonarota2011].

6.2 Optimisation de l'efficacité

L'efficacité de diffraction du peigne dépend fortement de la forme exacte des dents comme on peut s'y attendre pour un réseau. On peut en dériver les grandes lignes à partir du formalisme déjà utilisé A.3.1.

Par analogie avec un réseau, on attend en sortie du milieu que le champ soit composé d'une série d'échos qui correspondent aux différents ordre p de diffraction $\mathcal{E}(z, t) = \sum_{p \geq 0} a_p(z) \mathcal{E}(0, t - pT)$. Ici $\mathcal{E}(z = 0, t)$ désigne l'impulsion incidente. L'amplitude des

différents échos a_p dépend uniquement de z . On suppose que le peigne est beaucoup plus large que la bande-passante incidente (fig. 23). Il n'y a pas d'ordre négatif pour des raisons de causalité. C'est une différence majeure avec un réseau spatial qui n'est pas contraint par les relations de Kramers-Kronig. a_0 n'est autre que l'amplitude de l'impulsion transmise, a_1 , l'amplitude du 1er écho... etc ...

Je ne fais pas d'hypothèse *a priori* sur la forme du peigne, on le suppose juste périodique. On le définit donc à partir de sa décomposition en série de Fourier $g(\Delta) = \sum_n g_n e^{-in\Delta T}$.

On utilise l'équation de propagation dans l'espace de Fourier en régime perturbatif (eq. 49) avec $\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) = \tilde{\mathcal{E}}(0, \omega) \sum_{p \geq 0} a_p(z) e^{-ip\omega T}$ pour obtenir

$$\frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{\partial z} = \frac{i\alpha}{2\pi} \tilde{\mathcal{E}}(0, \omega) \sum_{p \geq 0, n} g_n a_p(z) e^{i(n-p)\omega T} \int_{\Delta} \frac{e^{-in\Delta T}}{\Delta - i\gamma} \quad (30)$$

On a négligé le terme ∂t (l'impulsion est plus longue que le cristal).

On reconnaît une représentation intégrale de la fonction de Heaviside H dans la limite sans amortissement $\gamma \rightarrow 0$ (avec $H(0) = 1/2$). On calcule les coefficients a_p de façon récursive :

$$\partial_z a_k(z) = -\alpha \sum_{p=0}^{\infty} a_p(z) g_{p-k} H(k-p) \quad (31)$$

Le $k^{\text{ième}}$ écho dépend des échos précédents pour des raisons de causalité ($0 \leq p \leq k$). On se focalise sur l'optimisation de l'écho d'ordre 1.

$$\partial_z a_0(z) = -\frac{\alpha}{2} g_0 a_0(z) \quad (32)$$

$$\partial_z a_1(z) = -\frac{\alpha}{2} [g_0 a_1(z) + 2g_{-1} a_0(z)]$$

On définit l'efficacité η comme l'amplitude du 1er écho *c.-à-d.* $|a_1(L)|^2$ où L est la longueur du cristal. On intègre les équations 32 avec aux limites $a_0(0) = 1$ (impulsion incidente) et $a_1(0) = 0$:

$$\eta(\alpha L) = (g_{-1} \alpha L)^2 e^{-g_0 \alpha L} \quad (33)$$

Les coefficients g_0 et g_{-1} régissent l'efficacité et dépendent de la forme exacte des pics. Prenons l'exemple des pics lorentziens (Γ désignera la HWHM), on peut calculer les coefficients g_0 et g_{-1} pour une épaisseur optique αL donnée. On obtient dans ce cas pour l'efficacité

$$\eta^{\text{Lor}}(\alpha L) = (\alpha L)^2 (\Gamma T)^2 e^{-\Gamma T(2+\alpha L/2)} \quad (34)$$

On a supposé les pics suffisamment fins pour être bien séparés [Chanelière2010b]. C'est précisément cette limite qui nous intéresse.

On voit sur cet exemple que pour une absorption donnée αL , on doit ajuster la largeur des pics $\Gamma_{\text{opt}} \approx \frac{1}{T} \frac{4}{\alpha L}$ pour maximiser l'efficacité. Dans cette limite, l'efficacité tend asymptotiquement vers 54% (voir fig. 25 en bas, courbe noire).

$$\eta_{\text{opt}}^{\text{Lor}}(\alpha L) = 4e^{-2} (\alpha L)^2 / (4 + \alpha L)^2 \quad (35)$$

Si on considère d'autres formes pour les pics, on peut montrer que pour une épaisseur optique donnée, des pics de forme carrée maximisent l'efficacité [Bonarota2010, voir Articles VII-G] (fig. 25).

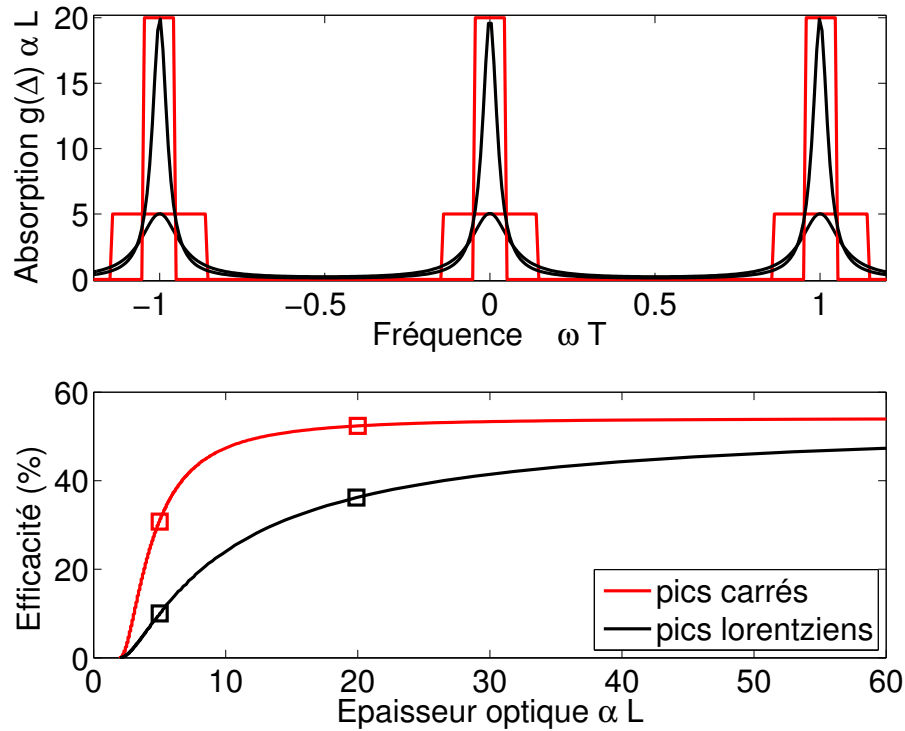


FIGURE 25 – Comparaison d'un peigne à pics lorentziens (noir) et carrés (rouge). En haut, les deux peignes pour une épaisseur optique $\alpha L = 5$ puis $\alpha L = 20$. En bas, on voit un gain important d'efficacité pour des pics carrés. On a utilisé la formule 33 (eq. 35 pour la courbe noire et son *alter ego* pour la rouge). Les carrés correspondent aux peignes du haut.

Lorsque l'on augmente l'absorption, l'efficacité augmente en prenant garde à ajuster la largeur des pics à sa valeur Γ_{opt} [Chanelière2010b]. C'est une tendance qualitative globale quelle que soit la forme des pics. Nous l'avons vérifié pour des lorentziennes (eq. 35). La gravure des pics avec une forme choisie requiert un bon contrôle de la séquence de préparation. Nous nous sommes attaqués au problème en utilisant le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$.

6.3 Expériences d'AFC dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

La préparation du peigne se fait par accumulation du pompage optique. Lorsqu'on envoie une paire d'impulsions, on produit une légère modulation de l'absorption par pompage optique. C'est la situation du 3PE (fig. 24). Si on répète cette paire, la modulation s'amplifie par accumulation (fig. 26).

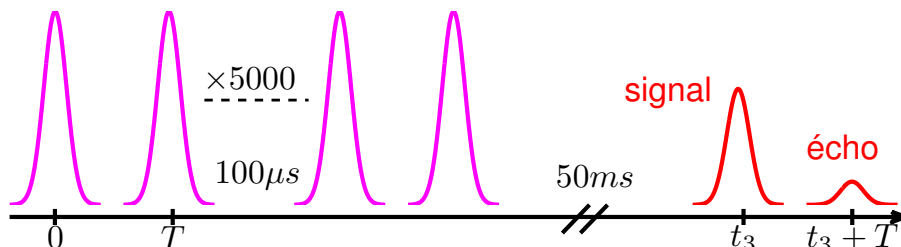


FIGURE 26 – Séquence de préparation d'un AFC typique [Chanelière2010b, Bonarota2010]. Les impulsions de préparation sont répétées 5000 fois toutes les $100\mu\text{s}$ pour obtenir le peigne par accumulation du pompage optique pendant 500ms donc. On attend ensuite 50ms ce qui permet à la population restante dans les différents niveaux excités de décroître. Le temps de stockage imposé par T vaut ici $1,5\mu\text{s}$. Le pompage optique s'effectue vers les sous-niveaux Zeeman dont la durée de vie est de quelques secondes.

Nous avons cherché maintenant à vérifier les prédictions de la figure 25 en contrôlant la forme des pics. La séquence rudimentaire représentée sur la figure 25 malgré sa simplicité permet d'obtenir des pics dont la forme est quasi-lorentzienne [Chanelière2010b, Bonarota2010]. Cette séquence nous servira de référence. On souhaite maintenant créer des pics carrés. Si une paire d'impulsions crée une modulation sinusoïdale, c'est parce que la transformée de Fourier d'une paire impose un pompage optique dont le spectre est sinusoïdal. Pour imposer une forme carrée, on suit le même raisonnement. Nous avons donc remplacé la paire par une suite de 61 impulsions. L'amplitude de chaque impulsion préparatoire est donnée par la fonction sinus cardinal (en amplitude et en phase) dont la transformée de Fourier donne la forme carrée [Chanelière2010b, Bonarota2010]. La comparaison est résumée sur la figure 27.

On observe un gain significatif lorsqu'on s'approche de la forme carrée pour les pics. Les pics ne sont pas parfaitement contrastés entre 0 et 1 pour la transmission (fig. 27). Cet effet bien compris est dû à la saturation du pompage optique qui déforme le peigne (fig. 27, pointillés bleus).

L'efficacité de l'écho observé peut aussi être calculée à partir de la transformée de Fourier du spectre d'absorption (eq. 33). Les deux résultats s'accordent.

L'optimisation de l'efficacité passe par une bonne compréhension de la phase de préparation qui se résume par du pompage optique sélectif en fréquence ou SHB. Nous avons effectué un travail important sur l'optimisation de la bande passante du protocole et du nombre d'impulsions que l'on peut stocker en parallèle (caractère multimode temporel) [Bonarota2011]. Je ne détaillerai pas cette étude expérimentale privilégiant plutôt l'analyse et la vision globale des différents protocoles.

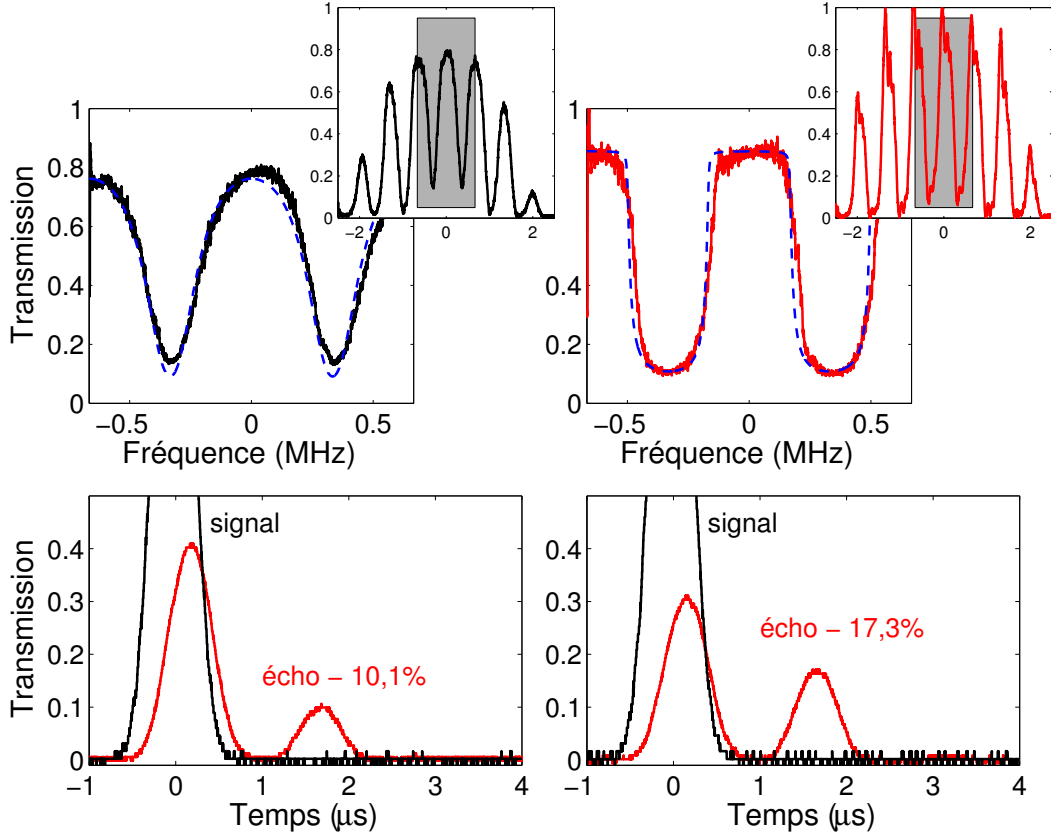


FIGURE 27 – Comparaison d’une séquence de préparation par paires d’impulsions (à gauche) et par 61 impulsions avec une amplitude en sinus cardinal pour produire un spectre carré (à droite). En haut le centre de la bande passante (les inserts montrent le spectre complet). J’ai fait figurer en pointillés bleus le résultat d’un modèle de pompage optique par équations de taux [Bonarota2010, voir Articles VII-G]. En bas, l’écho est plus efficace pour un spectre carré (17%) à comparer à 10% pour la séquence de référence.

6.4 L’AFC est un protocole dispersif!

J’ai clairement affilié l’AFC au 3PE. C’est une réalité tant les séquences de préparation sont similaires (fig. 24 et 26). On peut indubitablement voir l’AFC comme un 3PE accumulé [Sõnalg1994]. Malgré cette filiation, on ne peut pas ranger l’AFC dans la catégorie des protocoles basés sur l’écho de photon (voir 5). Il faut distinguer ici clairement 2PE et 3PE même si le terme « écho de photon » les décrit tous les deux. Je reprends ici la discussion que nous avons développée dans [Bonarota2012].

On peut en effet montrer que dans la situation où l’AFC est le plus efficace, le milieu est de plus en plus transparent. Autrement dit, l’absorption du spectre incident devient négligeable. On peut simplement estimer la fraction du spectre absorbée à partir du peigne lorentzien qui nous sert de référence. Si on s’intéresse au voisinage d’un pic, la transmission s’écrit

$$T(\omega) \simeq \exp\left(-\frac{\alpha L}{1 + 4\omega^2/\Gamma_{\text{opt}}^2}\right) \quad (36)$$

On voit en fait que les pics d'absorption ont une largeur typique de $\Gamma_{\text{opt}}\sqrt{\alpha L}$ lorsqu'on regarde la transmission. La fraction du spectre qui est absorbée est donc de l'ordre de $\Gamma_{\text{opt}}\sqrt{\alpha L} \times T$ à sa valeur optimale (on rappelle que $1/T$ est l'espace entre les pics). Lorsqu'on optimise l'efficacité, on garde alors $\Gamma_{\text{opt}} \approx \frac{1}{T} \frac{4}{\alpha L}$. En conclusion, la fraction absorbée se comporte comme $\frac{1}{\sqrt{\alpha L}}$. Elle est donc de plus en plus faible lorsqu'on tend vers le régime de forte efficacité (αL croissant). Autrement dit, toute l'énergie incidente traverse le milieu. On doit donc la retrouver intégralement si on somme les intensités des différents échos⁸ $\sum_{p \geq 0} |a_p|^2$.

J'avais généralisé les effets de lumière « lente » pour les protocoles dispersifs en 4, en parlant de réponse retardée. L'AFC induit dans le cadre de cette analyse une réponse particulière *c.-à-d.* une succession d'échos. Pour enfoncer le clou, on peut filer l'analogie avec la lumière « lente » en disant que le retard induit par l'AFC, T est analogue au retard de groupe T_g (eq. 5) de la lumière « lente ». La réémission à la demande n'est rendu possible que par transfert Raman dans les deux cas.

L'AFC malgré sa parenté avec l'écho de photon, plus précisément avec le 3PE est un protocole dispersif. Nous avons plus spécifiquement étudié les effets de lumière « lente » de l'AFC dans la référence [Bonarota2012].

J'espère avoir convaincu le lecteur de la cohérence de mon analyse en terme de protocoles dispersifs d'un côté et de ceux basés sur l'écho de photon (2PE) d'un autre. En guise de conclusion, je propose une synthèse de cette classification binaire.

7 Synthèse et classification

Le but ici n'est pas de passer en revue les protocoles et d'en résumer les performances qui sont parfois très impressionnantes prises indépendamment. On cherche plutôt à distinguer les protocoles à partir de leurs caractéristiques fondamentales.

7.1 Approche statique et contrôle dynamique

Pour reformuler la différence entre protocoles dispersifs et ceux basés sur l'écho de photon, on peut prendre l'approche suivante :

Une fois le système préparé, pour les protocoles dispersifs, sans contrôle dynamique sur le milieu, toute l'énergie du champ en sortira. Autrement dit, sans action extérieure, le champ éventuellement retardé ne laissera pas de trace de son passage.

Pour les protocoles basés sur l'écho de photon, le signal doit être absorbé intégralement. Cependant, si on ne fait rien, le signal ne sera jamais réémis. Il faut donc un contrôle dynamique pour déclencher la réémission. Cette distinction qui revient à réinterpréter dispersion et absorption, n'est rendue possible que par une approche initiale en terme de système à deux niveaux. On peut assimiler information portée par le champ et énergie.

8. En utilisant le théorème de Parseval

7.2 Où est enregistrée l'information ?

On peut aller plus loin en se demandant quel est le support de l'information après stockage. Pour la lumière « arrêtée », c'est la dimension spatiale qui est utilisée. En effet, l'impulsion comprimée est directement inscrite dans la profondeur du milieu, autrement dit dans la dépendance spatiale de la cohérence. À l'inverse, pour l'écho de photon 2PE, c'est l'élargissement inhomogène (dimension spectrale) qui enregistre directement le spectre incident (eq. 17), autrement dit dans la dépendance spectrale de la cohérence. Cette observation est intimement liée à la dispersion ou à l'absorption comme effet dominant. On a en effet associé dispersion et interaction hors résonance. Dans ce cas, que la raie soit homogène ou inhomogène n'a pas d'importance. Dans le cas d'une raie homogène, z est la seule variable continue capable d'enregistrer le signal. Il ne faut donc pas être surpris que pour les protocoles dispersifs, le champ soit enregistré dans la dimension spatiale.

Il faut modérer cette conclusion pour l'AFC et le GEM. L'AFC échappe partiellement à cette règle. Pour ce dernier, la dimension spectrale, sans être continue, discrétise une partie de l'information spatiale. Il y a en quelque sorte, une dimension spatiale continue associée à chaque pic du peigne. La confusion pour le GEM vient alors de l'association intrinsèque entre les deux dimensions spatiale et spectrale. Il y a donc un recouvrement entre les deux catégories de protocoles de ce point de vue.

7.3 Tableau récapitulatif

Afin de conclure, je propose un tableau qui résume l'ensemble de cette analyse.

Protocole	Contrôle dynamique	Variable de stockage
DISPERSIFS		
EIT (cf 4.2.1)	Couplage Raman on/off	spatiale
SHB (cf 4.2.2)	impulsion π Raman	spatiale
CHoS (cf 4.2.3)	Désaccord on/off	spatiale
Raman hors-résonance (cf 4.3)	Couplage Raman on/off	spatiale
AFC (cf 6)	Impulsion π Raman	spectrale et spatiale
ÉCHO DE PHOTON		
2PE (cf 5.1)	Impulsion π optique	spectrale
CRIB transverse (cf 5.2.1)	Stark $\Delta \rightarrow -\Delta$	spectrale
CRIB longitudinal - GEM (cf 5.2.2)	Stark $\Delta \rightarrow -\Delta$	spatiale et spectrale
ROSE (cf 5.3)	Deux impulsions π optiques	spectrale

8 Conclusion - Perspectives

8.1 Conclusion

La revue des protocoles de stockage donne une fausse impression de finitude. L'analyse en terme d'atomes à deux niveaux du protocole Raman hors résonance (voir 4.3) n'est pas parfaitement satisfaisante. Le formalisme peine aussi à décrire le CRIB longitudinal ou GEM à cause de la corrélation entre position et élargissement inhomogène qui fait pourtant l'efficacité remarquable du protocole. Beaucoup reste à faire, mon analyse n'est qu'un pas vers une vision complète des protocoles. On voit par exemple apparaître de nouveaux protocoles [Kalachev2012, Clark2012, Kaviani2012] qu'il serait bon de reconsidérer avec le point de vue - dispersif ou écho de photon. On ne peut en effet se satisfaire de voir foisonner les protocoles nouveaux sans comprendre le lien ou l'équivalence fondamentale entre eux [Clark2012]. La classification que je propose n'est donc qu'un point d'étape.

8.2 Perspectives

On constate à l'heure actuelle un enthousiasme clair autour des protocoles de stockage que l'on veut de mieux en mieux adaptés aux systèmes d'intérêt. Il faut reconnaître que les caractéristiques intrinsèques des cristaux dopés terre rare ont largement stimulé l'imagination. Cependant si on considère les mémoires quantiques avec des vapeurs atomiques, une avancée cruciale qui fait à mon avis la maturité actuelle de ce domaine est l'utilisation de vapeur comme source de rayonnement quantique [Simon2010]. Mémoire et source dont l'interconnexion répond au doux nom de répéteur quantique (DLCZ [Duan2001]) sont alors parfaitement adaptées en longueur d'onde et en bande-passante. C'est en revanche un tour de force expérimental si l'on souhaite accorder une source de fluorescence paramétrique [Clausen2011, Saglamyurek2011] avec un cristal dont la bande passante reste limitée au GHz dans le meilleur de cas mais plus vraisemblablement à quelques dizaines de MHz.

L'utilisation des cristaux comme source de photon demande de trouver l'analogue de DLCZ [Duan2001]. L'avancée conceptuelle dans cette direction a été réalisée par M. Sellars et J. Longdell [Ledingham2010] qui propose d'adapter le 2PE pour en faire une source non classique. On utilise alors l'émission spontanée non plus comme un bruit, mais comme une source qui excite spontanément la cohérence. Le rephasage de cette émission spontanée génère un second photon sous forme d'un écho corrélé. M. Afzelius propose d'adapter l'AFC pour en faire également une source de paires [Sekatski2011].

Les premiers résultats expérimentaux récemment obtenus par J. Longdell sont encourageants [Ledingham2012]. Cependant, il est difficile de se satisfaire de la configuration proposée qui souffre des mêmes limites que l'2PE. Pour éviter les problèmes d'amplification de l'émission spontanée, on se cantonne à des milieux minces. La réémission de l'écho devient alors peu efficace comme on l'a vu pour le 2PE. La source est donc d'autant plus fidèle qu'elle est inefficace. Cette voie est clairement passionnante. Elle est en quelque sorte le chaînon manquant de l'analogie entre cristaux dopés et vapeurs atomiques.

La configuration proposée par J. Longdell n'est pas satisfaisante et demande encore un important travail de conception.

Troisième partie

Traitement classique de l'information sur porteuse optique : un sujet d'avenir !

Sommaire

9	Intérêt des cristaux dopés terre rare	61
10	Tomographie optique modulée par ultrason	62
10.1	Principe	62
10.2	Filtrage spectral à large étendue dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	63
10.2.1	SHB dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	63
10.2.2	Résultats expérimentaux préliminaires	64
10.3	Étude de faisabilité dans le cadre de l'UOT	65
10.3.1	Réalisation d'un filtre utile pour l'UOT	66
10.3.2	Faisabilité dans un cryostat en circuit fermé	66
11	Asservissement laser sur un trou spectral	67
12	Cristaux dopés terre rare et vibrations	69
12.1	Les vibrations, source de perplexité	69
12.2	Vibrations et spectroscopie	70
12.2.1	Compression du cristal	70
12.2.2	Origine du spectre de vibration	71

Cette partie représente un double balancement par rapport à la partie II. D'une part, on oublie le caractère quantique pour revenir à des problématiques classiques de traitement de l'information dont la mémorisation n'est qu'un aspect. D'autre part, cette partie est beaucoup plus prospective, car peu a été fait dans les différentes directions que je propose. On est donc loin d'une revue. Je commencerai par justifier l'intérêt des cristaux dopés terre rare pour des applications de traitement sur porteuse optique. Une très brève revue du passé est particulièrement éclairante. Je développerai ensuite deux directions nouvelles de recherche.

Le titre de ce chapitre donne un faux caractère applicatif à mes motivations. Les directions que je propose donnent surtout un nouveau cadre, de nouvelles contraintes dont l'intérêt est de nous placer face à de nouvelles questions finalement très fondamentales.

9 Intérêt des cristaux dopés terre rare

Les ions de terre rare insérés dans des matrices cristallines possèdent des propriétés de cohérence remarquables à basse température [Liu2005]. Les temps de cohérence T_2 pour les matériaux qui nous intéressent varient de quelques dizaines de μs à une ms typiquement. On observe un fort élargissement inhomogène qui est dû aux déformations locales de la matrice et varie du GHz à la centaine de GHz. Ces deux propriétés sont la source de la plupart des applications. Pour une mémoire optique par exemple, le T_2 donne le temps de stockage et l'élargissement inhomogène la bande passante.

Le plus remarquable n'est sans doute pas que ces deux propriétés sont remarquables prises indépendamment. D'un côté, il est possible de trouver des temps de cohérence très longs dans des vapeurs dont l'isolation de l'environnement peut être excellente. D'un autre côté, il est possible de manipuler des bandes-passantes de plusieurs THz par effet non linéaires en optique guidée (voir par exemple pour des références récentes [Pelusi2009, Foster2009]). En revanche dans les cristaux, le produit des deux, temps $\times$ bande-passante, n'est pas égalé. Ces matériaux sont donc à la base de plusieurs applications largement étudiées dans notre groupe depuis longtemps [Ménager2001, Lavielle2003, Crozatier2006, Gorju2007a, Gorju2007b, Crozatier2007, Damon2010]. Cette thématique historique est toujours très active. Je vais présenter ici deux projets qui sortent en partie de ce cadre là. Pour les deux applications qui suivent, la bande passante n'a pas d'importance. On se focalisera ici sur le temps de cohérence ou plus précisément sur la largeur homogène, son alter ego dans le domaine spectral. Il est possible d'observer des transitions particulièrement étroites, sub-kHz, par *hole-burning* spectral (SHB) [Liu2005]. On exploitera plutôt ici la longue durée de vie des trous.

Une structure spectrale pérenne avec une résolution sub-kHz par SHB souffre directement de la comparaison avec une cavité Fabry-Perot (FP). Un FP semble en effet bien mieux adapté par la simplicité de sa mise en œuvre. Pour les deux applications que je vais présenter, ça n'est en réalité pas le cas comme je le montrerai.

10 Tomographie optique modulée par ultrason

La tomographie optique modulée par ultrason (UOT) demande un filtrage spectral performant de la lumière. L'application place cependant des contraintes nouvelles sur le filtre. Après en avoir expliqué le principe, je montrerai que le SHB dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ est bien mieux adapté qu'un simple FP. Je reprends ici l'analyse [Louchet-Chauvet2011].

10.1 Principe

L'UOT est une technique d'imagerie acoustique alternative de l'échographie classique. Cette dernière se base sur les variations d'impédance acoustique à l'intérieur d'un tissu biologique. Elle est très efficace et parfaitement maîtrisée à l'heure actuelle. Elle souffre d'une limite intrinsèque. Il n'est pas possible de distinguer deux tissus de même impédance est acoustique, mais qui sont de nature différente comme peuvent l'être des tumeurs. L'UOT permet de mesurer les coefficients acousto-optique et donne donc accès à une information supplémentaire qui peut se révéler cruciale. La résolution et la profondeur d'analyse sont la même que l'échographie. Le principe est résumé sur la figure 28.

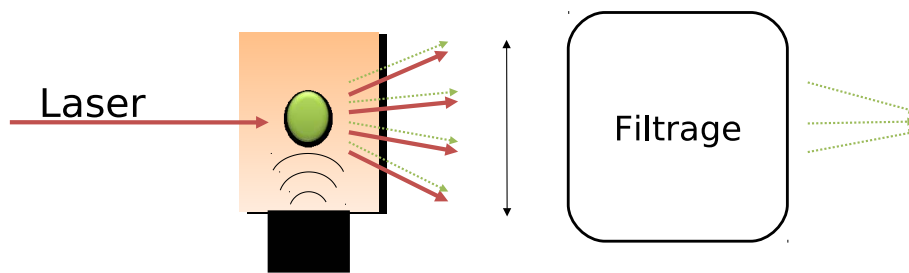


FIGURE 28 – Un transducteur focalise l'onde sonore en un point du tissu que l'on souhaite analyser. La détection se fait optiquement. Un laser illumine grossièrement la zone. Sa fréquence est légèrement modulée par effet acousto-optique. Le champ diffus est collecté en sortie. Par filtrage spectral, on isole la partie modulée dont l'intensité donne une information sur le point de focalisation acoustique.

Les ondes sonores sont ici dans le domaine MHz (1-5MHz). Elle génère des bandes latérales sur la porteuse optique après son passage dans le milieu. La longueur d'onde optique est choisie autour de 800nm pour sa bonne capacité de pénétration dans les tissus.

L'enjeu de la détection est double. D'une part, le signal acousto-optique est faible, le recouvrement entre le champ optique diffus et le point focal de l'onde sonore est petit ($\sim 10^{-3}$). Le filtre doit donc avoir une forte isolation. On va se donner comme objectif ~ 60 dB. D'autre part, la lumière collectée est diffuse. Elle a donc une étendue optique particulièrement importante. Là est la différence majeure avec un filtre FP. Il est possible d'obtenir une excellente isolation avec un FP confocal par exemple [Monchalain2009, Wang1995, Sakadžić2004]. Le filtrage sera alors monomode spatial. On perd énormément de signal en conséquence. Un progrès important a été réalisé en utilisant des matériaux photo-réfractifs [Ramaz2004, Murray2004]. Cette technique d'imagerie cohérente reste

cependant limitée par le temps de rafraîchissement peu compatible avec les modifications du *speckle* causées par les mouvements *in vivo*.

Le filtrage par SHB dans un cristal n'a pas de sélectivité spatiale outre les limites d'accès physique du système optique. Il est incohérent c-à-d indépendant du front d'onde, on évite ainsi les limites des matériaux photo-réfractifs.

Un cristal de $Tm^{3+}:YAG$ semble bien adapté. Il est possible de créer des trous de longue durée de vie pour fabriquer un filtre quasi permanent. Sa longueur d'onde est de 793nm bien adaptée à l'UOT puisqu'elle correspond à la fenêtre de transparence des tissus biologiques. Voyons maintenant dans le détail comment fabriquer un tel filtre comme nous l'avons décrit dans [Louchet-Chauvet2011].

10.2 Filtrage spectral à large étendue dans $Tm^{3+}:YAG$

Je présente ici des résultats très préliminaires qui visent à produire un filtre spectral adapté pour l'UOT à 793nm. Je reviens en premier lieu sur la situation spécifique du $Tm^{3+}:YAG$ sous champ magnétique.

10.2.1 SHB dans $Tm^{3+}:YAG$

Il est possible d'obtenir le phénomène de *hole-burning* dans un système à deux niveaux de grande durée de vie. On sature la transition. On observe alors pendant la durée de vie des populations un trou spectral [Allen1987]. Le SHB est d'autant plus facile à obtenir que la durée de vie est longue ou mieux qu'il existe un niveau relais où les populations s'accumulent. C'est le cas naturellement dans $Tm^{3+}:YAG$ (fig. 29).

Lorsqu'on sature la transition, on observe un trou par accumulation dans le niveau 3F_4 qui persiste pendant 10ms. C'est un excellent début qui fut le support de nombreuses démonstrations de traitement classique de l'information en générale [Lavielle2003, Gorju2007a, Krishna Mohan2007, Barber2010]. Plus particulièrement, la structure obtenue a été utilisée par Li *et al.* pour réaliser un filtre spectral pour l'UOT [Li2008a, Li2008b]. La dynamique en est cependant limitée intrinsèquement. En effet, on peut estimer grossièrement la profondeur du trou c.-à-d. la population résiduelle. Elle est en réalité donnée par le rapport du taux d'arrivée des populations sur le taux de départ autrement dit par le rapport des durées de vie $T_1^{met}/T_1^{exec} \sim 20$. Ce n'est pas suffisant si on souhaite une isolation de 60 dB que j'ai choisi comme référence. Nous avons proposé d'utiliser la structure Zeeman sous champ magnétique. Les populations s'y accumulent pendant plusieurs secondes ce qui augmente directement l'isolation du filtre.

Nous connaissons bien la structure du $Tm^{3+}:YAG$ sous champ magnétique suite aux thèses de A. Louchet [Louchet2008] et R. Lauro [Lauro2010]. Derrière la simplicité de la proposition se cache la complexité du matériau. Il existe en effet plusieurs orientations possibles du moment magnétique dans le YAG à cause de la symétrie du cristal. Autrement dit, la dynamique des populations dépend fortement de l'orientation du cristal dans le champ magnétique. Une bonne compréhension permet cependant d'optimiser les performances du filtre.

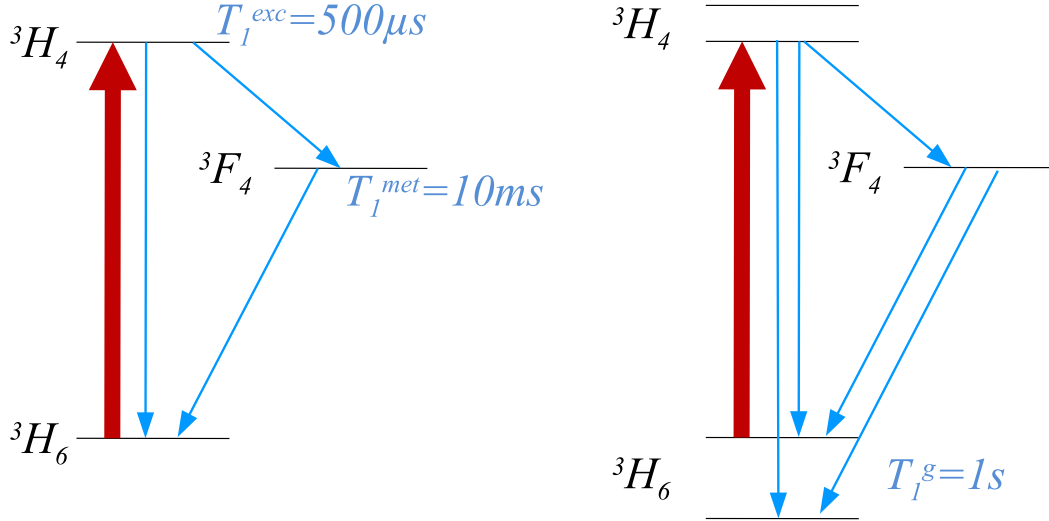


FIGURE 29 – Schéma de niveau du Tm^{3+} :YAG. À gauche, sans champ magnétique. La transition optique à 793nm relie 3H_6 et 3H_4 . Le niveau 3F_4 est métastable. Il permet d’accumuler des populations par pompage optique. Le trou observé persiste environ $T_1^{met} = 10ms$. Sous champ magnétique (à droite), on voit apparaître une sous-structure Zeeman pour les niveaux fondamental et excité. Les structures hyperfines observées persistent alors pendant plusieurs secondes.

10.2.2 Résultats expérimentaux préliminaires

L’étude expérimentale que je présente ici permet de vérifier qu’il est possible de creuser un filtre bien contrasté sous champ magnétique. Elle permettra aussi de dimensionner la puissance nécessaire pour le pompage optique. Dans la mesure où on cherche à terme une grande étendue, une surface importante peut demander beaucoup de puissance laser.

On va supposer ici que l’on souhaite filtrer les deux bandes latérales produites par UOT à la fréquence de 1MHz par exemple. On cherche donc à réaliser un filtre qui absorbe la porteuse et transmette les deux bandes latérales. On va donc creuser deux trous spectraux à $\pm 1MHz$ à partir d’un pompage bichromatique. Lors de la séquence de pompage, on fait donc sauter alternativement la fréquence par un modulateur acousto-optique entre +1MHz et -1MHz. On pompe aussi de façon continue. La séquence est très brièvement arrêtée pendant la période de sonde.

Le cristal de Tm^{3+} :YAG dopés à 0,5% a une absorption initiale de $\sim 20dB$ qui donnera l’isolation du filtre pour cette première démonstration. On applique un champ magnétique le long de l’axe cristallographique [001]. La polarisation est aussi orientée suivant cet axe. Cette configuration bien particulière a été largement utilisée pour les expériences d’AFC 6.3. Avec cette orientation, les différents dipôles dans la maille sont tous équivalents [Chanelière2010b, Bonarota2010, Bonarota2011].

On exploite un peu plus notre connaissance du Tm^{3+} :YAG sous champ magnétique en appliquant un champ de 35G. Pour cette valeur, le *splitting* Zeeman du fondamental est proche de 1MHz qui correspond à la position des bandes latérales. Dans ces situations où le *splitting* est faible, lorsqu’on creuse un trou à +1MHz, on envoie les populations atomiques vers 0MHz et +2MHz créant ainsi deux antitrous latéraux. Idem

pour -1MHz . Ce mécanisme de SHB bien connu lorsque le *splitting* est plus petit que la bande passante d'intérêt permet ici d'augmenter l'absorption autour de 0MHz (elle double en théorie). On voit le résultat du pompage optique sur la figure 30.

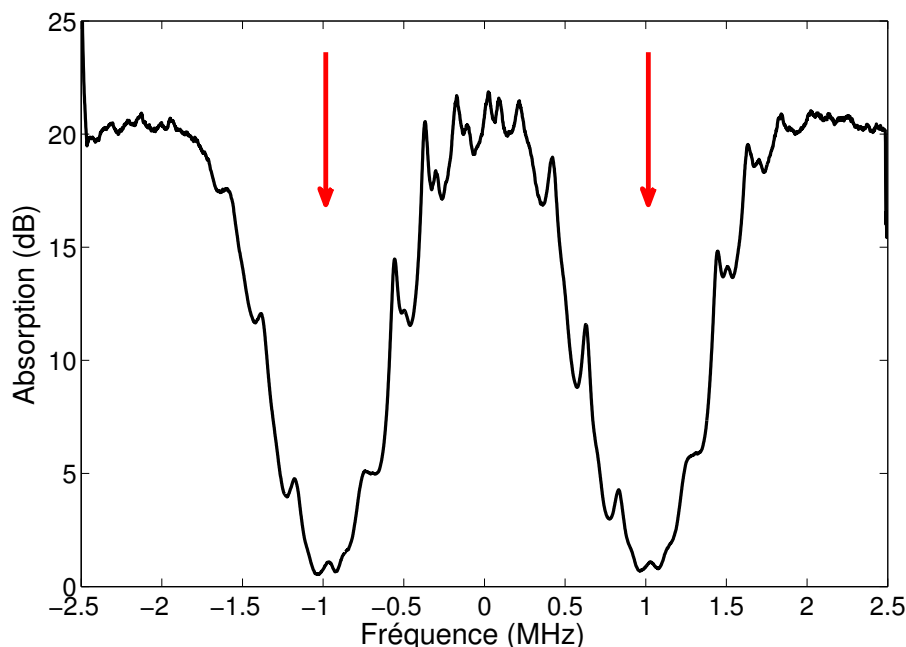


FIGURE 30 – Filtre spectral produit par un pompage bichromatique (symbolisé par les deux flèches). L'absorption initiale est de $\sim 20\text{dB}$. On atteint quasiment la transparence du milieu pour les bandes $\pm 1\text{MHz}$.

On construit effectivement un filtre pour les deux bandes latérales. Le contraste est ici de l'ordre de 20dB ($\alpha L \sim 4-5$ sur 5mm). On observe que l'absorption est légèrement plus grande au centre comme on l'attend par notre choix du champ magnétique (35G). On s'attendrait en réalité à ce qu'elle passe à 40dB . Ce n'est pas le cas pour deux raisons. D'une part, il est très difficile de mesurer l'absorption lorsqu'elle est aussi importante. Un résidu de lumière parasite ou hors résonance⁹ peut donner un reliquat de transmission faussant la mesure. D'autre part, la dynamique du pompage optique n'est pas simple en présence d'élargissement inhomogène. Le figure de SHB est ici le produit du pompage direct et croisé entre les différents sous-niveaux Zeeman. Une analyse plus précise doit être mise en œuvre. On obtient malgré tout des informations pertinentes pour la suite du projet.

10.3 Étude de faisabilité dans le cadre de l'UOT

Après cette expérience de principe, on peut se poser la question de sa mise en place pour l'UOT.

9. par exemple l'émission spontanée des amplificateurs optiques utilisés

10.3.1 Réalisation d'un filtre utile pour l'UOT

Le filtre réalisé est encourageant (fig. 30). Il faudrait en évaluer la dynamique réelle. On peut espérer avec une absorption initiale de 20dB obtenir une dynamique de 40dB grâce à la répartition des populations sous champ magnétique. Une méthode de mesure plus précise à forte absorption doit être mise en place.

Il faudra augmenter l'absorption initiale pour obtenir 60dB. Un cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ plus long ou plus dopés au risque d'élargir les pics¹⁰ est une solution naturelle. On peut aussi envisager l'utilisation de $\text{Tm}^{3+}:\text{LiNbO}_3$ dont la force de raie est plus importante. On pourrait alors prendre un cristal plus mince ce qui permettrait d'augmenter l'étendue dont on a vu l'intérêt pour l'UOT.

On peut maintenant se poser la question de la puissance requise pour brûler une surface plus importante. Pour notre démonstration, le faisceau avait un diamètre de 0,7mm et la puissance était de l'ordre de 5mW. On peut maintenant extrapoler afin d'obtenir une surface plus importante. Il est possible d'utiliser un *tapered amplifier* à 793nm pour produire 1W typiquement. On pourra alors pomper un diamètre de $\sim 1\text{cm}$. Cela semble raisonnable compte tenu de la taille des cristaux et de l'accès optique des cryostats.

10.3.2 Faisabilité dans un cryostat en circuit fermé

L'expérience précédente a été réalisée dans un cryostat à flux avec un insert à température variable (VTI) idéal pour la spectroscopie. Lorsqu'on va vers les applications, un cryostat en circuit fermé est préférable. Plusieurs raisons à cela. L'hélium ressource naturelle se fait rare et est de plus en plus demandé. Les cryomachines modernes ne demandent qu'un entretien réduit (annuel typiquement) et peuvent fonctionner continûment sur une longue période à l'inverse des cryostats à flux qu'il faut remplir quotidiennement. Enfin *but not least*, l'accès optique y est remarquable.

La référence actuelle dans le domaine est la Cryostation de Montana Instruments Corporation (fig. 31). C'est un produit très récent. Basée sur une conception originale, qui met en œuvre un réfrigérateur Gifford-McMahon (GM), la partie froide est déportée au moyen d'une tresse thermique. On réduit ainsi les problèmes de vibration qui restait le point faible des GM par rapport au Pulse-Tube [Ekin2006, Chijioko2010, Tomaru2004, S2Corporation2008].

Ces machines dont l'évolution technologique est remarquablement soutenue ne sont pourtant pas la panacée. Leurs performances en termes de puissance de froid et de température restent limitées. Les deux peuvent poser problème en ce qui nous concerne. La Cryostation que je prends comme référence n'a une puissance de froid que de 100mW. Cela peut être problématique si l'on illumine l'échantillon avec 1W laser. Il ne faut pas être trop alarmiste, car lorsque le trou est creusé, on ne fait que maintenir une faible absorption, la lumière de pompage traverse essentiellement le milieu. Par ailleurs, la lumière absorbée n'est pas intégralement convertie en chaleur, car une bonne partie est éliminée radiativement et quitte la partie froide. Il est malgré tout préférable de privilégier une puissance de froid comparable à la puissance lumineuse utilisée.

10. La largeur homogène augmente avec le dopage

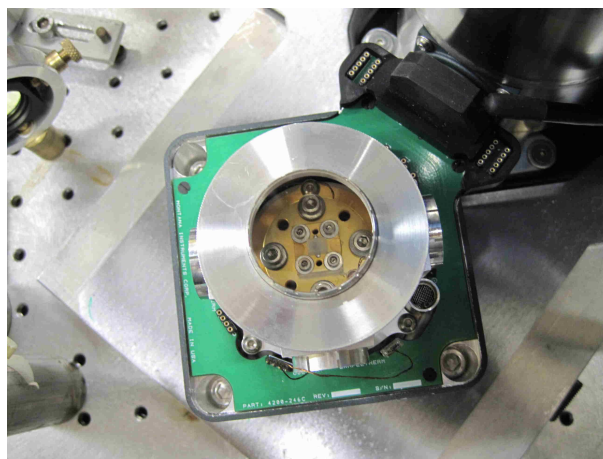


FIGURE 31 – Partie froide déportée de la Cryostation de Montana Instruments Corporation. La plaque froide est chapeautée par un écran thermique en aluminium (visible sur l'image). Au centre de la fenêtre du dessus, on observe un cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ (face dépolie). En fonctionnement, le tout est recouvert par un couvercle étanche qui maintient le vide.

Il est en réalité difficile de prédire *ab initio* la puissance de froid nécessaire alors qu'on évalue mal la puissance lumineuse convertie en chaleur. Il ne faut pas oublier par ailleurs que le contact thermique entre l'échantillon et la plaque froide reste un point technique délicat qui peut littéralement ruiner les performances du système cryogénique [Ekin2006]. Toute absorption de chaleur dans la partie froide induit une élévation de température qui peut être critique ici.

Notre proposition n'a de sens que si les niveaux Zeeman ont une longue durée de vie. Cette dernière est particulièrement variable autour de 3K qui est précisément la température typique des cryostats en circuit fermé. Ce constat n'est pas indépendant de la puissance de froid requise et/ou du bon contact thermique de l'échantillon puisque toute absorption de chaleur modifie la température du cristal par rapport à sa valeur nominale. J'ai pu vérifier très récemment grâce à une Cryostation de test que sa température de base était de 3,2K. Dans ces conditions la durée de vie du trou est de 1,25s et donc compatible avec nos attentes. Sa largeur reste très proche des mesures à plus basse température.

Une expérience en circuit fermé semble donc parfaitement envisageable. J'ai cependant passé sous silence un problème de fond des cryomachines. Le réfrigérateur génère de vibrations importantes [Ekin2006]. Ce peut être un souci majeur pour un montage qui requière une stabilité optique. C'est à mon avis un enjeu fort dans le domaine tant l'effet des vibrations est mal compris d'un point de vue fondamental ce qui limite directement les possibilités d'applications. J'en parlerai donc spécifiquement plus tard (partie 12).

11 Asservissement laser sur un trou spectral

Nous venons de voir qu'il est possible d'obtenir des structures spectrales fines par SHB. Le filtre ainsi réalisé peut alors être utilisé comme une référence de fréquence. Il

ne peut s'agir d'une référence métrologique absolue puisque d'une part l'élargissement inhomogène est important et d'autre part, la position de raie peut varier d'un échantillon à l'autre. En asservissant le laser sur un trou spectral, on souhaite plutôt réaliser un oscillateur local (LO) très fin qui pourra ensuite être comparé à une référence atomique.

Cette problématique métrologique est bien établie. À l'heure actuelle, on utilise des FP de grande finesse (>100000) comme référence. La stabilité ainsi obtenue est de l'ordre 10^{-16} sur une seconde pour l'état de l'art qui est le fruit de plusieurs années de développement [Young1999, Notcutt2005, Nazarova2006, Webster2007, Millo2009]. La limite est due aux fluctuations thermiques du matériau constituant le FP. Des solutions alternatives doivent être considérées pour aller plus loin.

Thorpe *et al.* ont récemment montré qu'il était possible d'égaliser les meilleurs FP en s'asservissant sur $\text{Eu}^{3+}:\text{YSO}$ avec quelques 10^{-16} de stabilité [Thorpe2011].

$\text{Eu}^{3+}:\text{YSO}$ semble bien adapté pour cette application. La largeur homogène est particulièrement faible (122Hz). Il est donc possible d'obtenir des trous très fins. Leur durée de vie est particulièrement longue (1 jour à 4K [Chen2011]) ce qui en fait une référence stable. Le LO est alors limité par les caractéristiques spectroscopiques du matériau, plus précisément les décalages spectraux induits par une fluctuation de température, de pression ou d'accélération ... Ces dernières sont suffisamment bonnes dans $\text{Eu}^{3+}:\text{YSO}$ pour en faire une référence compétitive. Elles dépendent cependant fortement des caractéristiques du matériau. Elles doivent être comprises afin de proposer des matériaux alternatifs mieux adaptés. Chaque système représente une étude en soi dont on peut donner quelques pistes de réflexion.

La dépendance spectroscopique aux perturbations extérieures nous ramène en réalité à des problématiques anciennes. En effet les fluctuations de température, de pression ou d'accélération sont en réalité associées à la compression ou la dilatation du cristal. La température par dilatation et la pression par compression en appliquant d'une force uniforme ou uniaxiale. La compression ou dilatation sera associée à un déplacement des ions de la matrice. Les raies sont en réalité déplacées par effet Stark due à l'interaction coulombienne. La spectroscopie sous contrainte dépendra fortement de la symétrie globale du cristal, mais aussi de la symétrie locale du site de substitution de la terre rare. Cette étude du champ cristallin fut un outil de choix pour l'étude des cristaux. Non pas pour prédire les déplacements de raie pour une symétrie donnée, mais au contraire pour mieux comprendre la symétrie qui n'était pas forcément connue à l'époque [Hutchings1964, Newman1971, Larionov1975, Judd1977].

Prédire la dépendance *ab initio* aux contraintes extérieures n'est pas un problème simple. Elle demande une analyse du champ cristallin qui s'appuie sur des mesures spectroscopiques classiques (fluorescence et/ou absorption). On peut alors déduire la symétrie locale (qui peut être connue dans la littérature) puis les paramètres du champ cristallin. Il est toujours possible de faire des mesures directes des décalages en pression [Bungenstock2000]. Ou bien de combiner analyse de champ cristallin et mesure d'effet Stark [Kaplyanskii2002, Macfarlane2007]. Ces mesures sont facilitées à l'heure actuelle, car à partir de lasers fins et de technique à haute résolution (spectroscopie SHB), il est possible d'utiliser des pressions faibles et des champs électriques modestes qui évitent d'un côté les enclumes aux diamants et de l'autre des tensions importantes toujours délicates à mettre en œuvre en environnement cryogénique.

Ces études existent partiellement pour $\text{Eu}^{3+}:\text{YSO}$, il serait intéressant de les remettre à jour dans le cadre de l'asservissement de laser. On peut en effet imaginer de minimiser la dépendance aux perturbations par une orientation appropriée du cristal puisqu'elles sont fortement liées à la symétrie du cristal et donc à la direction de la contrainte par rapport aux axes cristallographiques.

On peut de façon plus ambitieuse fabriquer un cristal optimisé pour cette application. Même s'il serait intéressant de considérer un autre dopant, erbium par exemple pour des raisons de dissémination de fréquence, on attend une faible sensibilité de l'euprium aux perturbations. Les deux niveaux de la transition ont en effet un $J = 0$ qui induira une plus faible dépendance des paramètres du champ cristallin. Gardons donc Eu^{3+} . Il serait en revanche intéressant de considérer une alternative à YSO. Chaque matrice demande une étude en soi. Une direction intéressante serait de considérer des matrices avec une symétrie plus forte. On attend en effet que les effets des perturbations se compensent à cause de la symétrie comme c'est parfois le cas pour l'effet Stark. Il ne s'agit ici que d'une piste de réflexion qui demandera un travail de fond.

Cette discussion très fondamentale nous a fait un peu perdre de vue les contraintes techniques liées à l'application. À l'image des FP de référence dont l'isolation a représenté un travail technique crucial pour atteindre une stabilité de 10^{-16} , un développement équivalent doit être entrepris pour le cristal dans un environnement cryogénique. Pour des raisons métrologiques, il serait intéressant de transposer la réalisation de Thorpe *et al.* [Thorpe2011] dans un cryostat en circuit fermé. Le LO peut ainsi fonctionner continûment. Comme je l'ai déjà mentionné, les vibrations sont un problème récurrent des appareils en circuit fermé. Elles peuvent ruiner le travail d'optimisation du cristal. Elles sont un verrou technologique commun des deux applications présentées ici, en 10 et 11. J'en discuterai donc à part.

12 Cristaux dopés terre rare et vibrations

L'utilisation d'appareils cryogéniques en circuit fermé est un progrès majeur de notre domaine. Les vibrations de la machine sont un souci important des applications en microscopie par exemple [Ekin2006]. Les premières mesures spectroscopiques avec des cristaux dopés terre rare les ont rapidement mise en évidence. Même si leur existence est connue, elles restent une source de perplexité dans le domaine. En effet, avec les progrès des appareils, elles sont passées de quelques dizaines de microns à quelques nanomètres pour les plus performants. Comment des vibrations aussi faibles arrivent à perturber le cristal ? La réponse n'est pas complètement claire à l'heure actuelle malgré l'enjeu que cela représente pour les applications. Je présente ici quelques pistes de réflexion pour avancer dans leur compréhension avec comme objectif de les minimiser.

12.1 Les vibrations, source de perplexité

Les vibrations sont visibles lors des mesures spectroscopiques. Une expérience d'écho de photon est largement perturbée par exemple. On voit typiquement de fortes fluctuations sur l'amplitude de l'écho d'un tir à l'autre. Elles peuvent être partiellement dues au bruit du laser. Pour distinguer bruit du laser et vibrations de l'appareil, on peut utiliser

un laser stabilisé ou bien éteindre la machine pendant quelques secondes. La température se maintient alors par inertie thermique sans vibration mécanique. Le cycle du réfrigérateur est généralement à une fréquence très faible (1 ou 2Hz). En synchronisant l'expérience sur le cycle, on peut en plus isoler des plages plus ou moins stables pour la centaine de μs que dure la séquence d'écho. On arrive ainsi à mettre en évidence l'effet des vibrations sur la mesure. Cela ne nous dit cependant pas la cause physique qui relie vibrations et fluctuations de l'écho de photon.

On peut tout de suite éliminer l'effet spatial de déplacement du cristal. La taille typique des cols de faisceau sont de l'ordre de 50 à 100 μm . Les vibrations des machines modernes sont largement submicroniques. Le cristal se déplace de façon négligeable par rapport au *waist* du faisceau. L'amplitude de la vibration n'est pas le seul facteur de perplexité. On doit s'interroger sur la fréquence des vibrations. Une séquence d'écho dure entre une dizaine et une centaine de μs . Pour qu'elle soit perturbée par une vibration, cette dernière doit donc se situer dans le domaine 10kHz-100kHz. Comment le cycle basse fréquence de la machine peut produire du bruit dans cette gamme du spectre? Les réponses ne sont pas claires à l'heure actuelle malgré l'enjeu. Je vais tâcher de proposer des pistes de réflexion pour y répondre.

12.2 Vibrations et spectroscopie

Un effet bien connu dans les vapeurs est l'effet Doppler. On attend un décalage des raies à cause de la mise en mouvement du cristal. Le décale $\Delta\nu(t)$ est proportionnel à la vitesse $\dot{x}(t)$:

$$\Delta\nu_{[Hz]}(t) = \dot{x}(t) / \lambda = 1,26.10^6 \times \dot{x}_{[m/s]}(t) \quad (37)$$

On a choisit pour la longueur d'onde $\lambda = 793$ nm celle du Tm^{3+} :YAG comme référence. On cherche ici plus un ordre de grandeur de toute façon.

On peut montrer que l'effet Doppler est en réalité beaucoup plus faible que l'effet de compression du cristal. Nous l'avons cité comme source d'instabilité statique de l'LO pour la métrologie en 11. Nous considérons maintenant sa version dynamique. On va en estimer un ordre de grandeur.

12.2.1 Compression du cristal

Comme on l'a dit, l'effet dépendra fortement du cristal et du sens de la contrainte. Cependant pour une orientation quelconque, on attend des ordres de grandeur comparables.

En effet, on peut noter de façon empirique, que les coefficients qui relient pression et décalage de fréquence sont souvent comparables d'un cristal à l'autre. Cela n'est pas forcément surprenant dans la mesure où les distances entre ions dans la matrice d'une part et les modules d'Young des cristaux d'autre part sont en général comparables.

On retrouve ce même constat lorsqu'on passe en revue les coefficients Stark [Macfarlane2007]. Nous avons vu le lien entre compression et effet Stark.

Listons de façon très incomplète les résultats de quelques papiers :

- Manjón [Manjón2004] dans $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$ mesure 50cm^{-1} pour 5GPa soit 30kHz/mbar.
- Turos-Matysiak [Turos-Matysiak2007] dans $\text{Pr}^{3+}:\text{YAG}$ mesure 100cm^{-1} pour 300kbar typiquement soit 10kHz/mbar.
- Thorpe [Thorpe2011] plus récemment dans $\text{Eu}^{3+}:\text{YSO}$ mesure 21kHz/mbar.

On constate la proximité des valeurs malgré la diversité des systèmes. On peut choisir $\kappa = 20\text{kHz/mbar}$ comme valeur typique. Il n'est alors pas difficile de relier le déplacement $x(t)$ et le décalage de fréquence $\Delta\nu(t)$ lors qu'on connaît le module d'Young E .

Par définition la contrainte σ est reliée à la compression du matériau $\sigma = E \frac{\Delta L}{L}$. Une simple translation du cristal n'induit pas de contrainte. En revanche, si la longueur d'onde acoustique est comparable à la longueur L , la compression devient importante. En effet, si V est la vitesse du son, alors $\Delta L = x(t) - x(t - L/V)$. Finalement, on obtient pour le décalage de fréquence :

$$\Delta\nu(t) = \kappa \frac{E}{V} \dot{x}(t) = \kappa \sqrt{E\rho} \dot{x}(t) \quad (38)$$

On a utilisé la relation entre le module d'Young et la vitesse du son $V = \sqrt{E/\rho}$ où ρ est la densité du matériau.

On peut faire une application numérique pour le YAG : $E = 300\text{GPa}$ et $\rho = 4500\text{kg/m}^3$ ainsi que $\kappa = 200\text{Hz/Pa}$, choisi comme valeur typique.

$$\Delta\nu_{[\text{Hz}]}(t) = 7,35 \cdot 10^9 \times \dot{x}_{[\text{m/s}]}(t) \quad (39)$$

Le décalage est proportionnel à la vitesse comme pour l'effet Doppler mais le résultat est sans appel. L'effet de compression semble de 3 ordres de grandeur plus fort.

On peut aller un peu plus loin et estimer l'ordre de grandeur du déplacement pour en voir l'effet sur l'écho de photon. Pour que l'effet soit net, il faut que la fréquence se situe dans le domaine 10kHz-100kHz. Supposons une vibration à 50kHz comme valeur intermédiaire. Quelle doit en être l'amplitude ? Pour perturber l'écho de photon, il faut que le décalage $\Delta\nu_{[\text{Hz}]}$ soit plus grand que la fréquence de Rabi. On prendra 100kHz comme valeur typique de nos expériences. On peut ainsi estimer l'amplitude de la vibration $\Delta x_{@50\text{kHz}}$ en supposant que la vitesse est simplement $\Delta x_{@50\text{kHz}} \times 50\text{kHz}$. On utilise l'expression (39) pour trouver $\Delta x_{@50\text{kHz}} = 0,27\text{ nm}$.

On ne peut directement comparer cette valeur avec la fluctuation rms donnée en général par les fabricants. Ces derniers donnent la valeur à 1Hz *c.-à-d.* la fréquence de fonctionnement du cycle de réfrigération. On s'intéresse à des valeurs dans la gamme au-delà de 10kHz.

12.2.2 Origine du spectre de vibration

Il y a malheureusement très peu de mesures à haute fréquence [Chijioko2010, Tomaru2004]. On s'attend malgré tout à une décroissance importante avec la fréquence

typiquement en $1/f$ [S2Corporation2008]. Partant de quelques nm à 1Hz, il n'est pas concevable d'aboutir à $\Delta x_{@50kHz} = 0,27$ nm.

On ne pourra obtenir une telle amplitude à haute fréquence que s'il existe une résonance qui amplifie la vibration. Nous avons pu mettre en évidence des résonances avec la Cryostation (en photo sur la fig.31). Elles se situent dans la gamme 30-50kHz. Leur observation a largement guidé la réflexion précédente. Leur origine n'est malheureusement pas claire.

Elles pourraient être due à une vibration mécanique d'une pièce en mouvement. A titre d'illustration, la fréquence propre d'une barre de cuivre de 4cm (considérée comme une poutre au sens mécanique) est de 46kHz¹¹. On notera au passage que la fréquence propre ne varie pas avec la température, car le module d'Young est quasiment constant [Ekin2006]. Il est revanche très difficile d'estimer comment une résonance mécanique se comporte à basse température. On attend en effet une forte modification du facteur de qualité, car la densité de phonons sera très différente de l'ambiante. Très peu de mesures sont disponibles.

On peut aussi imaginer que c'est le cristal même qui vibre. Pour le YAG de 5mm, la fréquence propre est de 820kHz, peu compatible avec nos mesures sur la Cryostation mais qu'on ne peut l'écarter a priori. Beaucoup reste à faire du point de vue fondamental pour analyser le rôle exact des vibrations. Une bonne compréhension devrait ensuite nous permettre de faire sauter un verrou technologique qui bride l'utilisation des cristaux dopés terre rare dans le domaine applicatif. J'en parlerai à nouveau en conclusion (partie 17).

11. Pour le cuivre, $E = 124\text{GPa}$ et $\rho = 8960\text{kg/m}^3$.

Quatrième partie

Comprendre les matériaux et leur interaction avec la lumière

Sommaire

13 Tm³⁺ :Y₂O₃, une étude emblématique de matériau	74
13.1 Orientation du cristal sous champ magnétique	76
13.2 Etude de l'effet Stark	78
13.3 Conclusion	81
14 Propagation cohérente d'impulsions fortes	81
14.1 Propagation des impulsions π	82
14.2 Impulsions Sécante Hyperbolique Complexe	86
14.3 Impulsions fortes dans une cavité active	90
14.3.1 Impulsions π intracavité	91
14.3.2 Inversion par des impulsions SHC intracavité	93

J'entame ici une partie transversale. En parallèle du contexte de traitement de l'information classique ou quantique avec nos cristaux, nous menons une activité de fond sur les matériaux d'un côté et sur l'aspect fondamental de leur interaction avec le rayonnement d'un autre. Ce travail est indispensable, fécond et sous-tend en réalité l'ensemble de l'activité.

On a vu dans les parties précédentes qu'il était important d'avoir des matériaux dédiés pour chaque application. Chacune a en effet un objectif propre qui demande souvent d'optimiser une des caractéristiques de l'échantillon, que ce soit l'épaisseur optique, le temps de cohérence optique ou de spin, la largeur inhomogène ou autres. Même si nous travaillons principalement sur Tm³⁺:YAG dont nous avons une connaissance toujours plus fine, nous ne négligeons pas d'autres pistes. Je présenterai une étude que nous avons menée sur Tm³⁺:Y₂O₃. Elle est typique de notre approche et me semble bien résumer nos préoccupations.

Nous avons vu par ailleurs que les protocoles quantiques et classiques demandent une bonne connaissance de l'interaction matière-rayonnement. Pour mon analyse (partie II), je me suis restreint au cas perturbatif bien adapté aux impulsions faibles. En pratique, nous utilisons de façon intensive des impulsions fortes pour contrôler les cohérences (voir par ex. 5.1 et 5.3). Leurs effets sur les variables atomiques ne sont pas toujours simples, mais sont en tout état de cause compliqués par la propagation des impulsions dans un milieu épais. Pour des champs forts, il est nécessaire de résoudre numériquement le système de Bloch-Maxwell (eqs. 44 et 46). L'analyse des simulations peut largement être comprise à partir d'arguments énergétiques et du théorème de l'aire de McCall et Hahn trop mal connu. Ce sera l'objet de la dernière partie.

13 Tm³⁺:Y₂O₃, une étude emblématique de matériau

L'étude que nous avons réalisée de Tm³⁺:Y₂O₃ est emblématique de notre approche [Chanelière2008, voir Articles VII-H]. L'yttrine, Y₂O₃, est un matériau remarquable. La matrice se caractérise par une absence de spin nucléaire pour les isotopes dominants de l'yttrium et l'oxygène. On peut alors espérer des temps de cohérence longs en l'absence de fluctuation magnétique de l'environnement local. Les premières mesures de temps de cohérence optique, de l'ordre de la dizaine de μ s, n'étaient pas très encourageantes [Liu2005, chap.7]. Cependant, on ne peut pas exclure que ces mesures dépendent fortement de la méthode de croissance. La confrontation avec un autre échantillon est donc intéressante. On peut par ailleurs espérer un long temps de cohérence pour le spin qui n'a pas encore été mesuré.

Un point particulier avait aussi attiré notre attention dans le contexte du stockage quantique par CRIB (voir 5.2). Le Tm³⁺:YAG n'est pas sensible au champ électrique. La raison est profonde, car elle est due à la symétrie locale D₂ du site de substitution dans la matrice [Gruber1989]. Le dipôle électrique permanent est donc nul ainsi que le coefficient Stark linéaire par voie de conséquence. Les protocoles basés sur l'effet Stark y sont impossibles. Ce n'est pas le cas de l'yttrine dont la symétrie est C₂ [Leavitt1982]. Les deux cristaux gardent cependant une symétrie globale cubique, l'absorption est alors isotrope. Ils gardent donc une certaine similitude qui aidera leur comparaison. Ces éléments ont fini de sceller notre motivation pour entamer une étude spécifique.

Nous avons alors décidé de nous focaliser sur deux caractéristiques importantes.

L'une est la mesure du coefficient Stark dans le contexte du CRIB.

L'autre est la détermination du rapport de branchement optique entre les deux sous-niveaux Zeeman. J'ai discuté à plusieurs reprises la présence d'un système en Λ dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. On l'utilise aussi bien pour du pompage optique en exploitant la longue durée de vie (par ex. fig. 7 ou 30) ou pour du transfert Raman grâce au long temps de cohérence (voir 4.2.2) dans le contexte du traitement classique ou quantique. L'existence même d'un système en Λ dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ n'a rien d'évident. Le branchement entre les niveaux de spin nucléaire est a priori interdit optiquement. Il n'est rendu possible que par le couplage entre l'interaction Zeeman électronique et l'interaction hyperfine. Cette démonstration aussi bien du point de vue théorique qu'expérimental fut le fruit d'un travail intensif avec le groupe d'O. Guillot-Noël et Ph. Goldner [Guillot-Noël2005, Goldner2006b, Goldner2006a, Louchet2007]. Un travail théorique similaire a donc été entrepris dans $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ en exploitant la similitude avec $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ (cristal cubique).

Avant d'entamer la partie expérimentale restait un problème majeur. Peu d'échantillons d'yttrine sont disponibles. Le point de fusion étant particulièrement élevé, il est très difficile de produire des cristaux de taille raisonnable par la méthode de Czochralski largement éprouvée et répandue. Nous avons alors bénéficié d'une collaboration existante entre le groupe de G. Boulon à Lyon et celui d'A. Yoshikawa à Sendai. Le groupe japonais est capable de produire Y_2O_3 par *micro-pulling down* dans un creuset en rhénium [Mun2007]. À partir de poudres commerciales d'yttrine et d'oxyde de thulium, ils ont produit un cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ de plusieurs millimètres de long dopé à 0,15%. Après orientation, coupe et polissage par l'équipe de Ph. Goldner, la plus grande dimension ~ 5 mm, est utilisée pour la propagation (fig. 32).

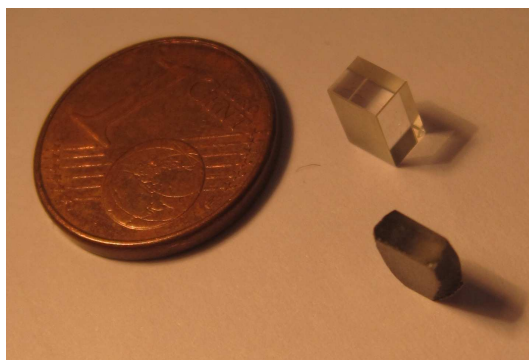


FIGURE 32 – En bas à droite, l'échantillon de $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ produit par l'équipe d'A. Yoshikawa à Sendai. En haut à droite, un cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ produit par Scientific Materials Corporation, une référence du point de vue de la qualité optique.

La qualité du cristal reste imparfaite. Des cassures et des inclusions sont visibles à l'œil. L'échantillon a une coloration brunâtre comme on peut le voir sur la figure 32, sans doute à cause de contamination par le creuset au moment du tirage à haute température. Sa production reste cependant un tour de force technique. Sa qualité est en tout état de cause suffisante pour notre étude.

13.1 Orientation du cristal sous champ magnétique

L'existence même d'un système en Λ dans Tm³⁺:Y₂O₃ dépend de l'orientation du champ magnétique. C'est le résultat du couplage entre l'interaction Zeeman électronique et l'interaction hyperfine de façon similaire au Tm³⁺:YAG [Guillot-Noël2005]. On montre que le rapport de branchement ne dépend que de l'orientation du champ et non de son amplitude. On peut interpréter le couplage comme la présence d'un champ magnétique effectif non aligné sur le champ appliqué et qui mélange les niveaux de spin.

L'optimisation de l'orientation se fait en deux étapes. D'abord, pour un site donné par rapport auquel on référence les composantes du tenseur gyromagnétique (axe C₂ pour la symétrie locale), on doit trouver l'orientation qui maximise le branchement. Ensuite, on s'intéresse à l'ensemble des sites qui ont a priori des rapports de branchement différents pour une orientation quelconque du champ magnétique. On peut alors chercher grâce à la symétrie globale du cristal un compromis entre le nombre de sites excités magnétiquement équivalents et un rapport de branchement raisonnable.

O. Guillot-Noël a fait le calcul complet du champ cristallin afin de déterminer les composantes du tenseur gyromagnétique dans le repère local x, y, z du site C₂. Il a alors montré qu'il était théoriquement possible d'obtenir un rapport de branchement de 0,29 si le champ magnétique est appliqué avec un angle de 87,3° ou 92,7° par rapport à z (axe de la symétrie C₂) et un angle de 101,5° dans le plan xy . Ceci est vrai pour un site de substitution C₂. Il y a dans la maille cristalline 12 sites différents d'un point de vue des propriétés électromagnétiques (voir fig. 33).

Il n'est pas possible d'obtenir un rapport de branchement de 0,29 pour tous les sites en même temps. Cela n'est possible que pour un site à la fois. On regroupe les sites en six classes (voir fig. 33) a priori inéquivalentes pour une orientation quelconque du champ magnétique. On adopte donc la stratégie suivante. On cherche une orientation du champ magnétique pour laquelle plusieurs classes deviennent équivalentes magnétiquement avec un rapport de branchement R raisonnable. On éteint les classes restantes en choisissant une polarisation (noté E) orthogonale au dipôle de transition. Le résultat est résumé dans le tableau suivant.

Orientation du champ (θ, ϕ)	Classes choisies		Classes à éteindre en polarisation		
	Type	R	Type	R	Polarisation
(86.8°, 90°) ou (93.2°, 90°)	I, II	0.13	III, IV, V, VI	$< 5 \cdot 10^{-3}$	E// [001]
(90°, 90°) // [010]	I, II	0.12	III, IV, V, VI	$< 5 \cdot 10^{-3}$	E// [001]
(3.2°, 0°) ou (-3.2°, 0°)	III, IV	0.13	I, II, V, VI	$< 5 \cdot 10^{-3}$	E// [010]
(0°, 90°) // [001]	III, IV	0.12	I, II, V, VI	$< 5 \cdot 10^{-3}$	E// [010]
(90°, 3.2°) ou (90°, -3.2°)	V, VI	0.13	I, II, III, IV	$< 5 \cdot 10^{-3}$	E// [100]
(90°, 0°) // [100]	V, VI	0.12	I, II, III, IV	$< 5 \cdot 10^{-3}$	E// [100]

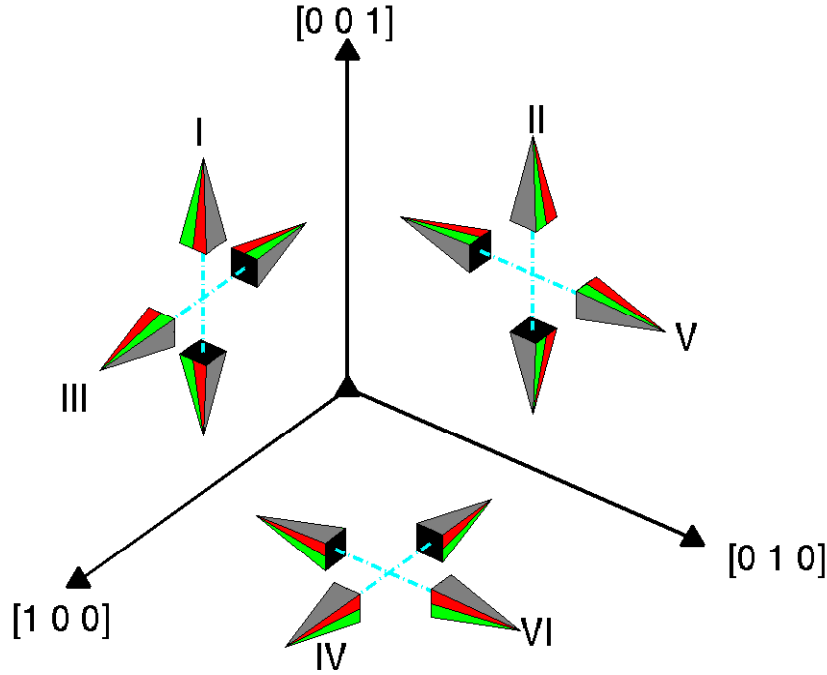


FIGURE 33 – Représentation schématique des sites de substitution du thulium dans la matrice d' Y_2O_3 lorsqu'il remplace un yttrium. Les sites se déduisent des uns des autres par les transformations du cube. La flèche du polyèdre désigne l'axe de symétrie C_2 . On les regroupe deux à deux par classe : I et II suivant $[001]$, III et IV suivant $[100]$, V et VI suivant $[010]$. Pour chaque classe, il y a deux sites dont les axes C_2 sont opposés : ils sont magnétiquement équivalents (même tenseur gyromagnétique) mais électriquement différents (dipôles de transition et dipôles permanents opposés).

Les angles (θ, ϕ) sont référencés dans le repère cristallographique. Le premier θ par rapport à l'axe $[001]$ et le second ϕ dans le plan $([100], [010])$.

Il est possible d'obtenir un rapport de branchement de $R = 0,12$ ou $0,13$ pour deux des classes. On peut alors éteindre les quatre autres en choisissant une polarisation appropriée. Par exemple, pour la première ligne du tableau, on ne souhaite conserver que les classes I et II. Il suffit alors que la polarisation E soit suivant $[001]$ (axe de symétrie de I et II donnant le dipôle de transition). La polarisation est alors orthogonale aux dipôles de transition des classes III, IV, V et VI.

Nous n'avons pas fait d'études expérimentales afin de vérifier la prédiction théorique. C'est un travail considérable qui fut l'objet de la thèse d'Anne Louchet pour le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Concernant $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$, conscient des limites de l'échantillon actuel sur lesquelles je reviendrai en conclusion 13.3, nous avons décidé de nous limiter à une analyse théorique.

Avant de passer à la mesure du coefficient Stark, nous avons décidé de vérifier l'orientation du cristal. C'est un point important si on souhaite par la suite appliquer un champ magnétique avec une orientation précise. Même s'il a été orienté à partir de diffraction aux rayons X, on préférera une mesure optique pertinente pour notre activité. Pour ce faire, on effectue une expérience de nutation optique [Hocker1968, Allen1987, Sun2000]

pour repérer les axes cristallographiques. On focalise simplement une impulsion forte (quelques mW) dont on recueille la transmission. On observe un début d'oscillation à la fréquence de Rabi (fig. 34).

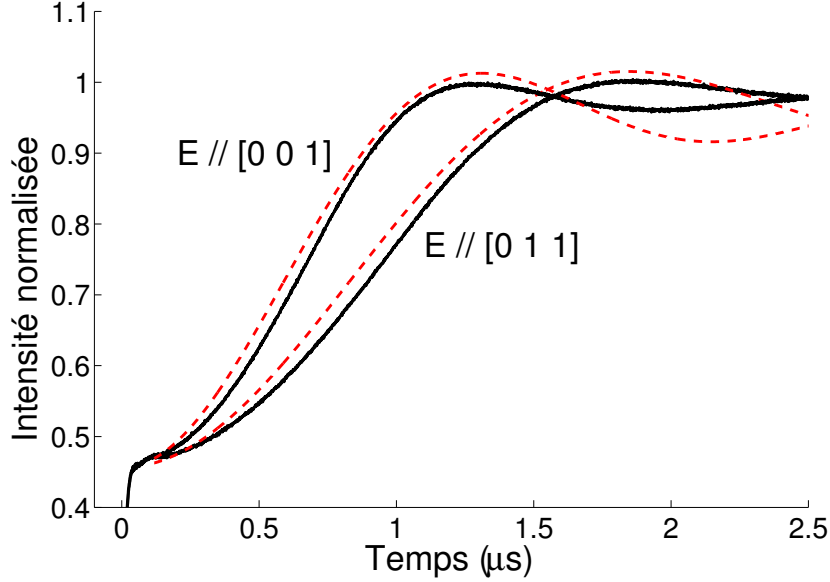


FIGURE 34 – Nutation optique suivant deux polarisations différentes, [001] et [010]. Suivant [001], on observe les classes I et II. Suivant [010], on observe les classes I, II, V et VI mais avec une fréquence de Rabi réduite d'un facteur $\sqrt{2}$ (facteur de projection géométrique). Les oscillations de Rabi qui prennent la forme théorique d'une fonction de Bessel (pointillés rouges) sont ici plus amorties à cause sans doute du temps de cohérence ou de la distance de Rayleigh limitée du faisceau.

En l'absence de champ magnétique les sites des classes I et II sont équivalents (fig. 33), idem pour III et IV puis pour I et VI. On se propage suivant un axe cristallographique noté [100]. La polarisation est dans le plan ([010], [001]). En tournant la polarisation, on observe sur la figure 34 alternativement les classes I et II (polarisation suivant [001]) puis les classes V et VI (polarisation suivant [010]).

On peut ainsi vérifier la coupe du cristal ainsi que des éventuels désalignements dûs au porte-échantillon.

13.2 Etude de l'effet Stark

On n'applique pas de champ magnétique ici, mais un champ électrique par l'intermédiaire d'électrodes collées sur les faces du cristal. Le champ est appliqué suivant un axe cristallographique noté [100]. La polarisation du laser sonde précisément les sites correspondants.

On s'attend à observer ce que l'on appelle parfois un pseudo effet Stark [Kaiser1961, Shelby1978, Macfarlane2007, Kaplyanskii2002]. C'est le cas pour Tm³⁺:Y₂O₃ pour un site non-centrosymétrique dans un cristal avec une symétrie centrale globale. On sonde les classes I et II (fig. 33) qui sont équivalentes électriquement. Dans chaque classe, les

sites sont en sens inverse et ont donc des dipôles permanents opposés. Ces sites ont des décalages Stark opposés que révèlent la spectroscopie de *hole-burning* (fig. 35).

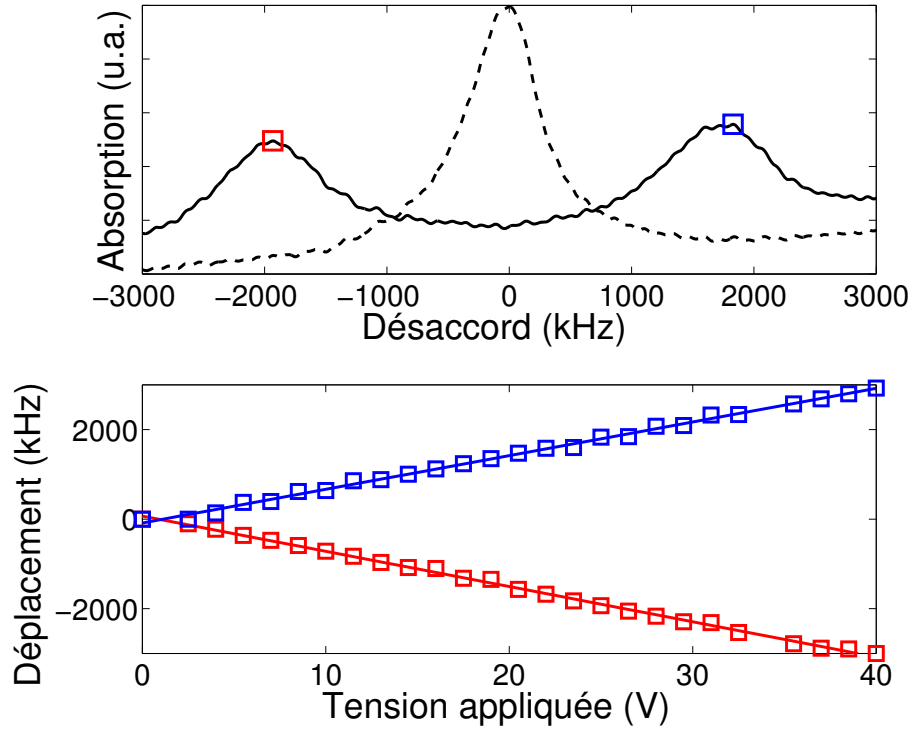


FIGURE 35 – Mesure du coefficient Stark par SHB. On brûle un trou par accumulation des populations dans le niveau 3F_4 métastable (voir fig. 29 pour le schéma de niveaux du thulium qui diffère très peu entre $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ et $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$). On obtient le spectre en pointillés (en haut) en l'absence de champ électrique. Si on applique une tension de 25V pendant que l'on enregistre le spectre, le trou se sépare en deux. On répète l'expérience pour plusieurs valeurs croissantes de la tension. On pointe la position des trous qui s'écartent petit à petit (en bas). On obtient respectivement les coefficients -79 kHz/V et 75 kHz/V pour les désaccords négatifs (droite rouge) et positifs (droite bleue).

On brûle un trou en l'absence de champ électrique. On applique une tension aux électrodes alors que l'on enregistre le spectre de transmission. Le trou se sépare en deux. L'écartement est proportionnel à la tension appliquée.

La mesure est concluante. On lui préfère malgré tout une méthode dont l'élégance n'a d'égale que la précision : l'écho de photon modulé par effet Stark [Macfarlane2007]. Partant d'une séquence d'écho, on intercale pendant la période d'évolution libre une impulsion de champ électrique (fig. 36). L'impulsion électrique induit un déphasage supplémentaire entre les deux sites de dipôles opposés. Cette phase module l'écho de photon. En effet, dans le cas où le déphasage accumulé qui dépend de la tension appliquée et de la durée de l'impulsion est égale à π , le dipôle macroscopique est détruit par interférence destructive entre les deux sites. Il n'y a plus d'écho. Cette méthode est plus robuste lorsqu'on ne dispose pas d'un laser suffisamment étroit. Elle est aussi plus sensible, car on utilise des tensions plus faibles.

On applique une séquence d'écho avec deux impulsions fortes séparées de $7\mu\text{s}$ (fig.

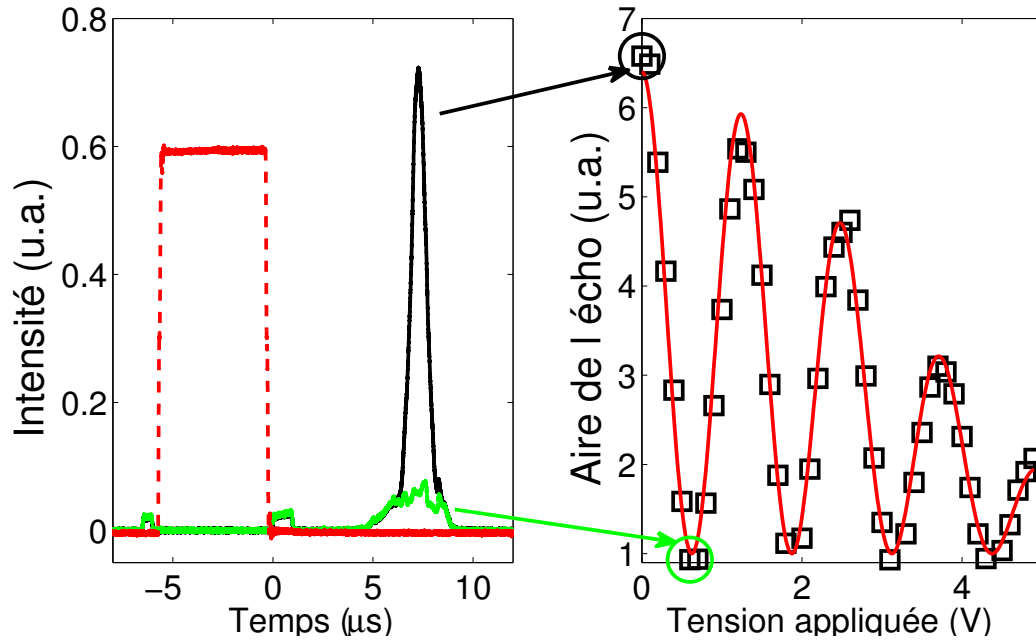


FIGURE 36 – à gauche, séquence d'écho de photon. Les deux premières impulsions fortes placées à $-7\mu\text{s}$ et $0\mu\text{s}$ sont très atténuées à la détection par un modulateur acousto-optique qui sert d'interrupteur pour protéger le détecteur. En noir, l'écho en absence de champ électrique, puis en vert en présence d'une impulsion électrique de 600mV (pointillés rouges). Cette dernière situation correspond à l'interférence destructive entre les deux sites Stark. À droite, on voit l'écho varier lorsqu'on change la tension électrique. Les points encerclés en noir et en vert correspondent à l'absence de champ électrique et une impulsion de 600mV respectivement dont on voit les échos sur les courbes de gauche. On mesure le coefficient Stark à partir de la période des oscillations et de la durée de l'impulsion électrique : 75 kHz/V. Les points sont ajustés par une courbe en sinus cardinal (rouge).

36). On y intercale une impulsion électrique¹². On observe effectivement une modulation de l'écho en fonction de la tension appliquée (la durée de l'impulsion électrique est gardée constante). Le coefficient de 75 kHz/V confirme bien la mesure par *hole-burning*. Il correspond à un coefficient de 22 kHz.cm/V pour une séparation des électrodes de 3mm.

Malgré la précision de la méthode, il faut prendre la valeur absolue avec précaution. L'incertitude dans notre cas vient du collage des électrodes sur le cristal (laque à l'argent). La constante diélectrique d'Y₂O₃ est forte : 18. Si les électrodes ne sont pas parfaitement collées (avec une précision de 3/18mm typiquement), le champ électrique est alors plus faible que prévu. Malgré cette incertitude, on peut noter que la valeur est typique des mesures d'effet Stark dans nos cristaux comme nous l'avons noté en 12.2 (voir [Macfarlane2007]).

12. Il est aussi possible d'intercaler l'impulsion électrique entre la seconde impulsion et l'écho. Seul compte le déphasage total accumulé.

13.3 Conclusion

Malgré les résultats de l'étude précédente, nous avons choisi de mettre le travail sur $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ en suspens. Nous voyons deux limitations importantes à l'échantillon actuel.

Le temps de cohérence optique reste court, de $4\mu\text{s}$ à 3K et de $9\mu\text{s}$ à 1.2K confirmant les résultats de Y.C. Sun [Liu2005, p.403] avec un échantillon différent (méthode Czochralski). La qualité actuelle du cristal n'est pas pleinement satisfaisante. Les faisceaux sont fortement déformés ce qui rendrait difficile des expériences où le mode spatial doit être bien défini.

En ce sens là, $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ souffre de la comparaison avec $\text{Tm}^{3+}:\text{LiNbO}_3$. Pour ce dernier, d'une part la qualité optique est généralement excellente avec des temps de cohérence comparables. D'autre part, la force de raie est plus importante ce qui permet de travailler avec des fréquences de Rabi plus élevées. En revanche, aucune étude du rapport de branchement n'a été faite dans $\text{Tm}^{3+}:\text{LiNbO}_3$. Seules quelques études des durées de vie des sous-niveaux Zeeman ont été réalisées pour différentes orientations du champ magnétique. Elles sont peu encourageantes, car pour les orientations du champ où on espère un rapport de branchement important, la durée de vie semble excessivement faible.

On peut malgré tout garder $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ en tête, cette fois produit par une autre méthode que *micro-pulling down* ou Czochralski. On a vu de fortes disparités entre Czochralski et Verneuil dans $\text{Eu}^{3+}:\text{YSO}$ en terme de temps de cohérence [Flinn1994]. On peut espérer également une amélioration de la qualité optique même si la maîtrise d'une méthode de croissance spécifique est un pari risqué.

Cette partie laisse entrevoir la complexité et parfois la déception de l'analyse d'un matériau original. Elle illustre bien notre travail et nos hésitations. J'aimerais conclure par un aspect plus personnel qui justifie aussi l'intérêt des études de spectroscopie fine. J'ai mentionné en discutant du protocole de stockage ROSE en 5.3 l'importance de la proposition de J. Longdell [McAuslan2011b]. Il propose comme pour le CRIB, d'utiliser des champs électriques pour empêcher l'émission du 1er écho. J'ai en réalité rapidement compris sa proposition à la lumière de la technique de spectroscopie qu'est l'écho de photon modulé par effet Stark. Sur la figure 36 (à droite), on peut dire que lorsqu'on observe une interférence destructive pour l'écho, c'est parce qu'il est rendu silencieux par l'application du champ électrique. C'est précisément l'esprit du ROSE ou de ce que J. Longdell appelle l'HyPER. Il est amusant de noter à quel point une technique de mesure astucieuse peut déboucher sur un protocole de stockage original.

14 Propagation cohérente d'impulsions fortes

Les impulsions π dont nous avons vu l'intérêt pour le stockage d'information en II ne sont qu'un des instruments de la « boîte à outils » de la manipulation optique cohérente. Ces techniques sont l'héritage de la RMN qui a poussé très loin le contrôle cohérent [Abragam1961]. La différence majeure entre RF et optique est précisément la propagation pour cette dernière. Alors qu'en RMN, l'échantillon reste largement plus petit que la longueur d'onde excitatrice, ce n'est plus possible en optique. C'est une

spécificité de notre domaine.

Je reviendrai en premier lieu sur les impulsions π monochromatiques. On a entrevu brièvement leur importance dans l'analyse des résultats en 5.1.3. Elles ont en réalité un comportement très singulier qui mérite une analyse. Je discuterai ensuite l'utilisation d'impulsions Sécante Hyperbolique Complexe (SHC) dont je présente les avantages. Je conclue par un travail plus prospectif et plus original sur la « propagation »¹³ d'impulsions fortes dans une cavité. La motivation de cette étude vient des diverses propositions de mémoire quantique qui n'utilisent pas un milieu optiquement épais, mais un milieu mince fortement couplé au champ par une cavité. On peut transposer la plupart des protocoles existants à la situation en cavité. J'ai donc décidé récemment de m'intéresser à la manipulation optique cohérente intracavité.

14.1 Propagation des impulsions π

Les impulsions π sont une brique de base de la manipulation cohérente d'information. Je vais maintenant en analyser le comportement propagatif qui est une spécificité de l'optique. Pour cela, les deux lois de conservation A.4.1 et A.4.2 sont particulièrement éclairantes. On constate une singularité du théorème de l'aire A.4.2 pour les impulsions π . Elles conservent leur aire comme toutes impulsions d'aire multiple de π . C'est moins surprenant pour un multiple de 2π car elles correspondent à une rotation complète de la population qui revient à l'état fondamental. Aucune énergie n'est donc laissée dans le milieu après le passage de l'impulsion. On est en situation de transparence auto-induite (SIT pour Self-Induced Transparency) où la déformation de l'impulsion peut être minimale [McCall1967]. Cet aspect est plus problématique pour des impulsions π , 3π , 5π ... car elles inversent les populations et laissent donc une partie de leur énergie derrière elles.

Il nous faut être plus quantitatif. On peut en effet montrer que la fraction d'énergie laissée dans les populations est significative par rapport à l'énergie incidente. Une impulsion π de durée typique τ et dont la fréquence de Rabi est de l'ordre Ω_M , contient une énergie (eq. 52) :

$$U_\Omega = \int_z \Omega^*(z, t) \Omega(z, t) \sim c \Omega_M^2 \tau$$

On a en fait $U_\Omega \sim c \pi^2 / \tau$ pour une impulsion π puisque $\Omega_M \tau \sim \pi$ par définition. On peut maintenant comparer l'énergie incidente U_Ω à celle laissée aux atomes U_w dans une tranche de longueur $1/\alpha$ sur la bande passante de l'impulsion $1/\tau$. On aura (eq. 53)

$$U_w = \frac{\alpha c}{\pi} \int_z \int_\Delta g(\Delta) (w(\Delta; z, t) + 1) \sim \frac{\alpha c}{\pi} \frac{1}{\alpha} \frac{1}{\tau} = \frac{c}{\pi} / \tau$$

On voit que U_Ω et U_w sont très comparables. Une fraction importante de l'énergie est donnée aux atomes lors de la propagation. L'énergie décroît significativement. La conservation de l'aire ne peut se faire qu'au prix d'une déformation importante, plus précisément d'un étirement.

13. J'entends ici par propagation, l'étude de l'impulsion de sortie. Je ne considérerai pas la propagation à l'intérieur de la cavité même.

Cette originalité des impulsions π avait peu été étudiée à l'inverse de la SIT des impulsions 2π [McCall1967, Slusher1974]. Nous y avons donc consacré une étude expérimentale [Ruggiero2010, voir Articles VII-I] que je résume ici.

On utilise à nouveau le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ dopé à 0,5% ce qui permet d'avoir une absorption importante $\alpha L \sim 4 - 5$ (sur 5mm). On a choisi d'étudier la propagation d'impulsions carrées d'aire forte. Les impulsions carrées sont peu utilisées pour la manipulation cohérente en présence d'élargissement inhomogène, car ils sont loin d'optimiser la bande passante à durée fixe. Ils ont cependant l'avantage d'être facile à produire. Les bords étant bien définis, les effets d'étirement sont alors d'autant plus spectaculaires. On envoie sur le cristal des impulsions carrées de durée $7\mu\text{s}$ dont on fait varier la puissance (fig. 37).

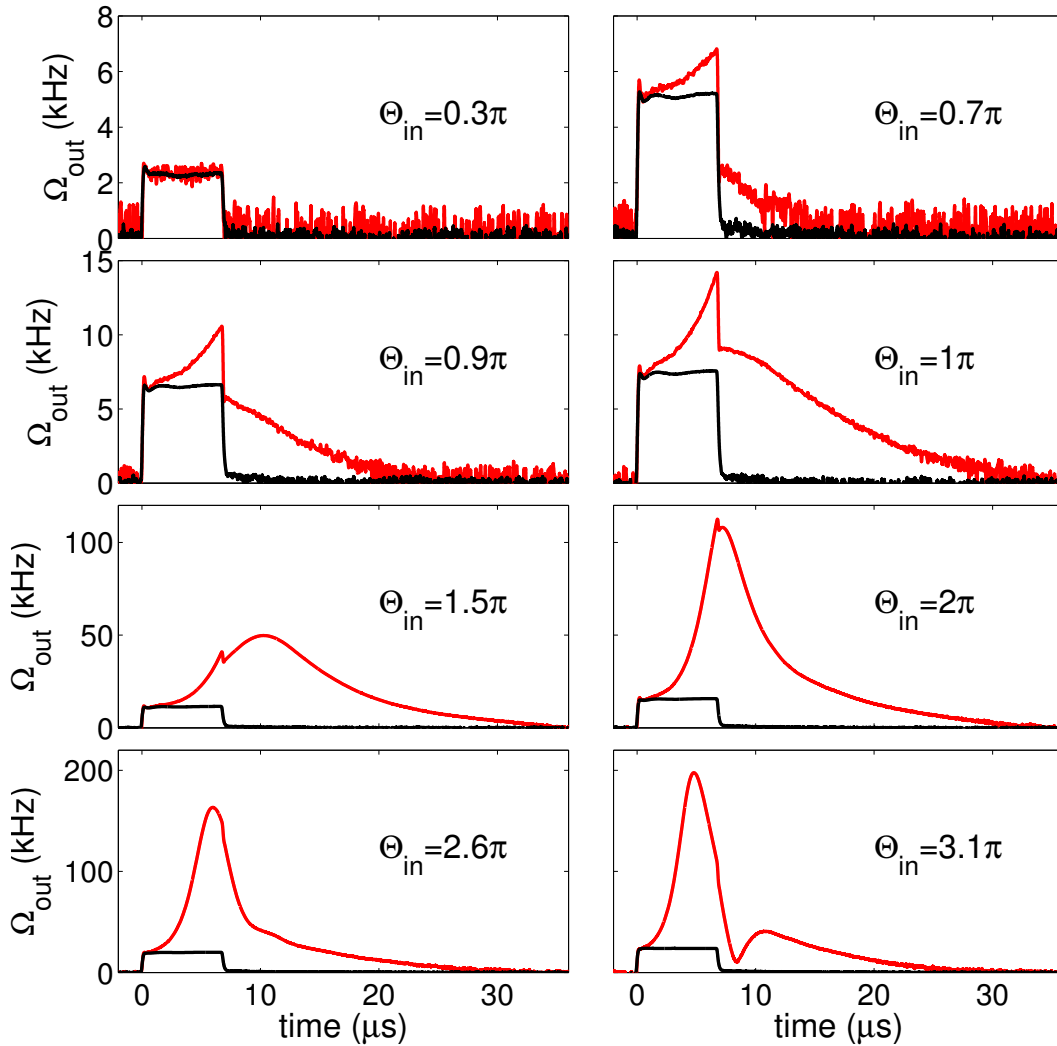


FIGURE 37 – Comparaison de l'impulsion d'entrée $\Omega_{\text{in}} = \Omega(0, t)$ avec celle de sortie $\Omega_{\text{out}} = \Omega(L, t)$ pour une puissance incidente et donc une aire croissante (la durée $7\mu\text{s}$ est fixe). En rouge l'impulsion de sortie Ω_{out} et en noir, $\Omega_{\text{in}} \exp(-\alpha L)$: à faible puissance, les deux sont égales. Pour chaque courbe, on définit l'aire Θ_{in} de l'impulsion Ω_{in} .

Afin d'effectuer une analyse quantitative, on représente les impulsions par leur fréquence de Rabi dépendant du temps. Pour calibrer la détection, il faut relier fréquence

de Rabi et intensité du laser. Pour se faire, on effectue une expérience de nutation optique (analogue à la fig. 34) reliant une fréquence à une intensité (plus précisément à sa racine carrée). On cherche à comparer $\Omega_{\text{in}} = \Omega(0, t)$ et $\Omega_{\text{out}} = \Omega(L, t)$ ¹⁴. On a pris soin pour la mesure de sélectionner le centre du faisceau gaussien par un *pin-hole* imagé ensuite sur le détecteur : la fréquence de Rabi y est bien définie.

On observe clairement sur la figure 37 la déformation d'une impulsion d'aire forte. À l'inverse, aux aires faibles, l'impulsion est atténuée en conservant sa forme $\Omega_{\text{out}} = \Omega_{\text{in}} \exp(-\alpha L)$. L'étirement qui est dû à l'apparition d'une queue suivant l'impulsion devient très significatif pour $\Theta_{\text{in}} \sim \pi$. Malgré sa déformation pour $\Theta_{\text{in}} = 2\pi$, l'impulsion se comprime s'approchant du régime de SIT. On peut être plus quantitatif en comparant l'aire Θ_{out} de l'impulsion Ω_{out} avec la prédiction du théorème de l'aire (eq. 55) (fig. 38) qui est à la base de la discussion.

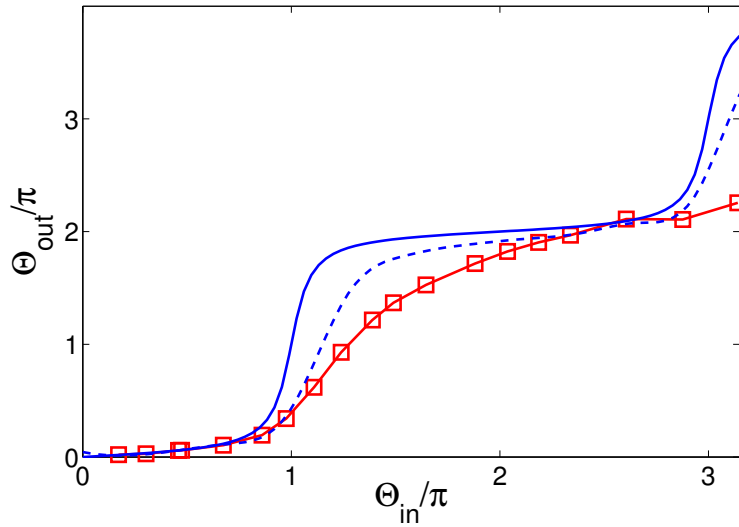


FIGURE 38 – Comparaison de l'aire de l'impulsion en sortie Θ_{out} pour différentes valeurs de l'aire incidente Θ_{in} . En rouge, les résultats expérimentaux (voir fig.37) à comparer au résultat du théorème de l'aire (eq. 55, courbe continue en bleu). La courbe en tirets bleus est le résultat d'une simulation numérique.

On reproduit grossièrement la prédiction théorique. Pour expliquer le décalage, aux aires fortes où l'impulsion est fortement distordue, on peut invoquer la décohérence. Le théorème de l'aire suppose la propagation entièrement cohérente. Même si l'impulsion de $7\mu s$ est courte devant $T_2 \sim 40\mu s$, ce n'est plus le cas après étirement. Pour prendre en compte cet effet, on doit faire une simulation numérique du système de Bloch-Maxwell.

On résout numériquement les équations de Bloch (eqs. 44) par la méthode classique de Runge-Kutta pour une série de désaccords Δ . On intègre ensuite sur Δ pour calculer le terme source de l'équation de Maxwell (eq. 46). L'intégration spatiale $\partial_z \Omega(z, t)$ se fait par la méthode d'Euler¹⁵. On obtient ainsi le profil temporel de l'impulsion de sortie Ω_{out} quelle que soit la forme incidente Ω_{in} .

14. La calibration de la fréquence de Rabi Ω_{out} est en réalité plus problématique. Ayant vérifié $\Omega_{\text{out}} = \Omega_{\text{in}} \exp(-\alpha L)$ aux petites aires, on utilise cette propriété pour calibrer Ω_{out} . Il reste une incertitude sur αL qui est difficile à mesurer pour un milieu épais, on prendra $\alpha L = 4, 5$.

15. On néglige le terme $\frac{\partial \Omega(z, t)}{c \partial t}$ vu la taille des impulsions.

On peut simuler ainsi la propagation et entre autre calculer l'aire Θ_{out} . On choisit $T_2 = 35\mu s$. On obtient la courbe en tirets bleus sur la figure 38. On voit qu'on se rapproche de l'expérience. On peut donc conclure que la propagation n'est pas entièrement cohérente à cause de l'étirement. D'autres effets sont sans doute en jeu. Cela devient plus clair si on compare directement les profils Ω_{out} issus de l'expérience et de la simulation numérique (fig. 39).

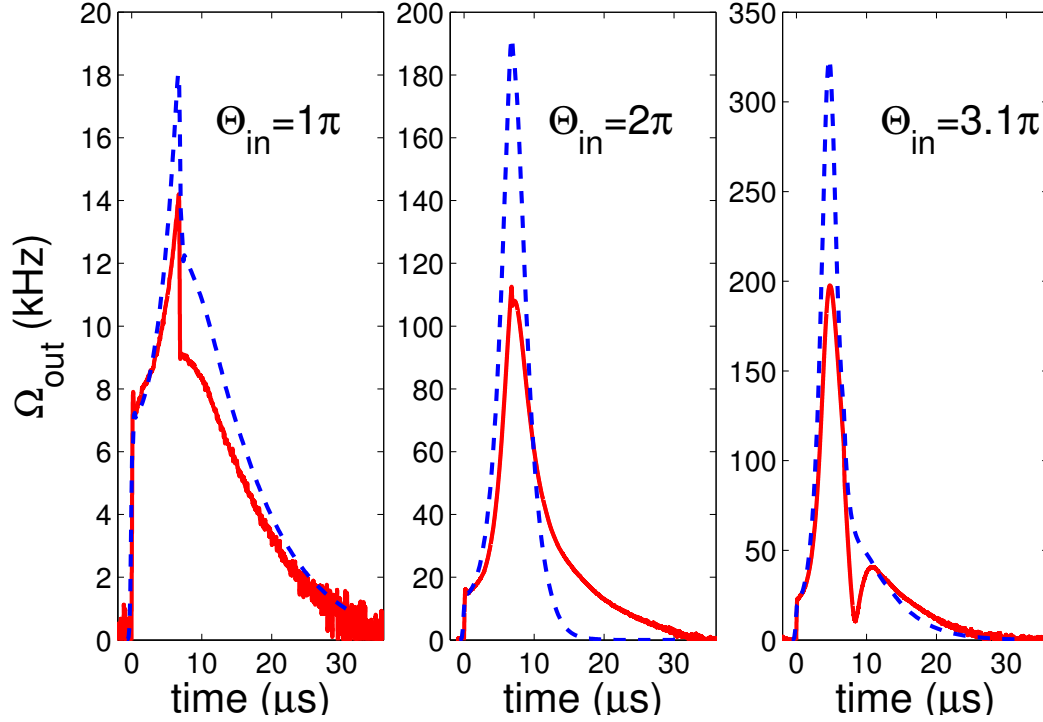


FIGURE 39 – Comparaison de la simulation numérique (tirets bleus) et des données expérimentales (rouge) pour des impulsions d'aires $\Theta_{\text{in}} = \pi$, 2π et 3.1π de gauche à droite.

On reproduit qualitativement bien l'impulsion Ω_{out} pour $\Theta_{\text{in}} = \pi$ (fig. 39 à gauche) malgré un décalage d'amplitude qui peut être dû à une incertitude sur la calibration des fréquences de Rabi. La forme est en revanche bien différente pour $\Theta_{\text{in}} = 2\pi$ et 3.1π . On atteint ici sans doute les limites de la simulation unidimensionnelle (selon z , l'axe de propagation). On néglige alors les dimensions transverses du faisceau. La profondeur de champ du faisceau, 9mm pour un *waist* de $25\mu m$, est ici plus grande que le cristal (5mm). Pour s'affranchir de la divergence du faisceau dans le cristal, on aurait pu augmenter le *waist* au prix d'une aire d'impulsion plus faible. Cette évolution ne permet cependant pas de s'affranchir de l'effet d'effeuillage décrit par Slusher [Slusher1974]. Selon la dimension transverse, la fréquence de Rabi et donc l'aire, varie fortement. On s'attend donc à un fort gradient transverse entre absorption (aire faible) jusqu'à la SIT par exemple (aire de 2π). Autrement dit les bords du faisceau sont plus absorbés que le centre si l'aire vaut par exemple 2π au centre. Cet effet d'effeuillage modifie la diffraction même du faisceau dans le cristal et modifie son mode en sortie. On s'attend à ce qu'il soit important pour des aires supérieures à 2π . C'est précisément la zone où le désaccord entre l'expérience et la simulation unidimensionnelle est important (fig. 39). Une simulation bidimensionnelle pour faisceau gaussien serait nécessaire.

Les impulsions π monochromatiques sont en tout état de cause difficiles à mettre en œuvre dans des milieux épais. Leur déformation est une caractéristique intrinsèque qu'imposent les lois de conservation de l'énergie et de l'aire. L'énergie en premier lieu puisqu'on a montré qu'elles en perdent l'essentiel dans le milieu. Si les deux termes U_Ω et U_w sont comparables, c'est fondamentalement parce que la durée d'impulsion et la bande passante d'inversion sont reliées et imposent U_Ω et U_w respectivement. Les impulsions Sécante Hyperbolique Complexe (SHC) permettent de s'affranchir de cette limite.

14.2 Impulsions Sécante Hyperbolique Complexe

Les SHC sont un cas particulier d'impulsions adiabatiques largement utilisés en RMN [Abragam1961] et développés pour obtenir l'inversion des populations qu'assure un *sweep* en fréquence par suivi adiabatique. Par un *chirp* de l'impulsion, on découple durée et bande passante d'inversion ce qui était un facteur limitant des impulsions π monochromatiques. Elles sont particulièrement efficaces lorsqu'un élargissement inhomogène est présent [Silver1985].

Elles ont aussi l'avantage d'être moins contraignantes que les impulsions π car la condition d'inversion adiabatique que nous verrons plus tard (eq. 41) est une inégalité. On s'affranchit ainsi des défauts dûs aux fluctuations de puissance. Leur utilisation en optique dans des milieux absorbants est très tentante, mais a peu été étudié. Spano et Warren ont montré par des simulations numériques qu'elles pouvaient inverser efficacement un milieu épais [Spano1988]. Nous allons nous concentrer ici sur des impulsions SHC qui sont un cas particulier d'impulsion modulée en fréquence [Garwood2001].

On les décrit par leur enveloppe en sécante hyperbolique $\Omega(t)$ associée à un *sweep* en fréquence $\omega(t)$:

$$\begin{aligned}\Omega(t) &= \Omega_0 \operatorname{sech}(\beta t) \\ \omega(t) &= \omega_0 - \mu \beta \tanh(\beta t)\end{aligned}\tag{40}$$

ou de façon plus compacte lorsque l'enveloppe $\Omega(t)$ est complexe incluant ainsi les variations de fréquence $\Omega(t) = \Omega_0 \operatorname{sech}^{1-i\mu}(\beta t)$ avec $1/\beta$ la durée de l'impulsion et μ une constante.

On peut montrer que les atomes partant du fondamental finissent dans l'état excité par un suivi adiabatique de l'impulsion. La condition d'adiabaticité s'écrit

$$\Omega_0 \gg \mu \beta^2 / \Omega_0 \tag{41}$$

Autrement dit sur la sphère de Bloch, la fréquence de Rabi doit être plus grande que la variation angulaire du vecteur de contrôle [de Seze2006].

Il est possible de résoudre analytiquement l'évolution des populations dans une large gamme de paramètres Ω_0, β et μ [Rosen1932, Hioe1984, Silver1985]. On va plus spécifiquement s'intéresser à la situation qui les différencie le plus des impulsions monochromatiques, c'est à dire lorsqu'elles couvrent une bande passante plus grande qu'une impulsion π de même puissance donnée pour cette dernière par Ω_0 . Une SHC couvre un domaine spectral de $2\mu\beta$. On s'intéresse au cas $\mu\beta \gg \Omega_0$. La condition d'adiabaticité

(eq. 41) est satisfaite si $\mu \gg 1$. Autrement dit, la bande passante est bien plus grande que l'inverse de la durée d'impulsion. On peut calculer analytiquement le profil d'inversion dans cette limite : la population $w(\Delta; t)$ désaccordée de Δ par rapport à la fréquence centrale ω_0 du laser vaut après la passage de l'impulsion [Silver1985, de Seze2006] :

$$w(\Delta, t \rightarrow +\infty) = -\tanh\left(\frac{\pi\Delta}{2\beta} + \frac{\pi\mu}{2}\right) \tanh\left(\frac{\pi\Delta}{2\beta} - \frac{\pi\mu}{2}\right) \quad (42)$$

La population est bien inversée sur l'intervalle $[-\mu\beta; \mu\beta]$ qui correspond au *sweep* de fréquence.

Cette analyse de RMN est valide pour un milieu optiquement mince pour lequel l'impulsion est peu modifiée par la propagation. On se pose maintenant la question pour un milieu épais.

On peut commencer par une analyse qualitative en utilisant les lois de conservation A.4.1 et A.4.2. On ne peut malheureusement pas invoquer le théorème de l'aire de McCall et Hahn qui n'est valide que pour des impulsions monochromatiques ou faiblement chirpés [Eberly1998]. Regardons la conservation de l'énergie. Intéressons nous à une tranche typique de longueur $1/\alpha$. L'énergie incidente d'une SHC sera (eq. 52)

$$U_\Omega = \int_z \Omega^*(z, t) \Omega(z, t) \sim c\Omega_0^2/\beta$$

que l'on peut comparer à l'énergie qu'il faut pour inverser un profil de population de largeur $2\mu\beta$: (eq. 53)

$$U_w = \frac{\alpha c}{\pi} \int_z \int_\Delta g(\Delta) (w(\Delta; z, t) + 1) \sim \frac{c}{\pi} 2\mu\beta$$

On voit en fait que si la condition d'adiabaticité (eq. 41) est satisfaite alors $U_\Omega \gg U_w$. Autrement dit l'impulsion contient beaucoup plus d'énergie qu'il n'en faut pour réaliser l'inversion. On s'attend donc que les SHC soient beaucoup plus efficaces dans un milieu épais comme prédit par Spano et Warren [Spano1988]. On a donc recours comme eux à des simulations numériques, car il n'existe pas de solution analytique en propagation.

On compare ici une impulsion π monochromatique et une SHC (fig. 40).

Alors que pour une impulsion π , le profil d'inversion est de plus en plus étroit spectralement à cause de l'étirement de l'impulsion, on constate que la SHC inverse plus profondément le milieu. On notera malgré tout que l'inversion d'une SHC n'atteint pas 100% c-à-d $w(0, 0, t \rightarrow +\infty) \neq 1$. Il s'agit d'un effet de décohérence avec $T_2 = 35\mu s$. On doit prendre des impulsions plus longues qu'une impulsion π (β petit) pour satisfaire la condition d'adiabaticité (eq. 41). L'évolution n'est donc pas entièrement cohérente ce qui limite son efficacité.

On voit malgré tout le potentiel des SHC dans un milieu épais. Nous les utilisons pour le protocole ROSE 5.3. Nous n'avons pas encore réalisé d'étude systématique de leur propagation. Nous avons en revanche entamé une analyse de leur capacité d'inversion dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Elle est importante pour la réalisation du ROSE. Nous avons entrevu par la simulation le compromis à trouver entre une SHC longue qui satisfait bien la

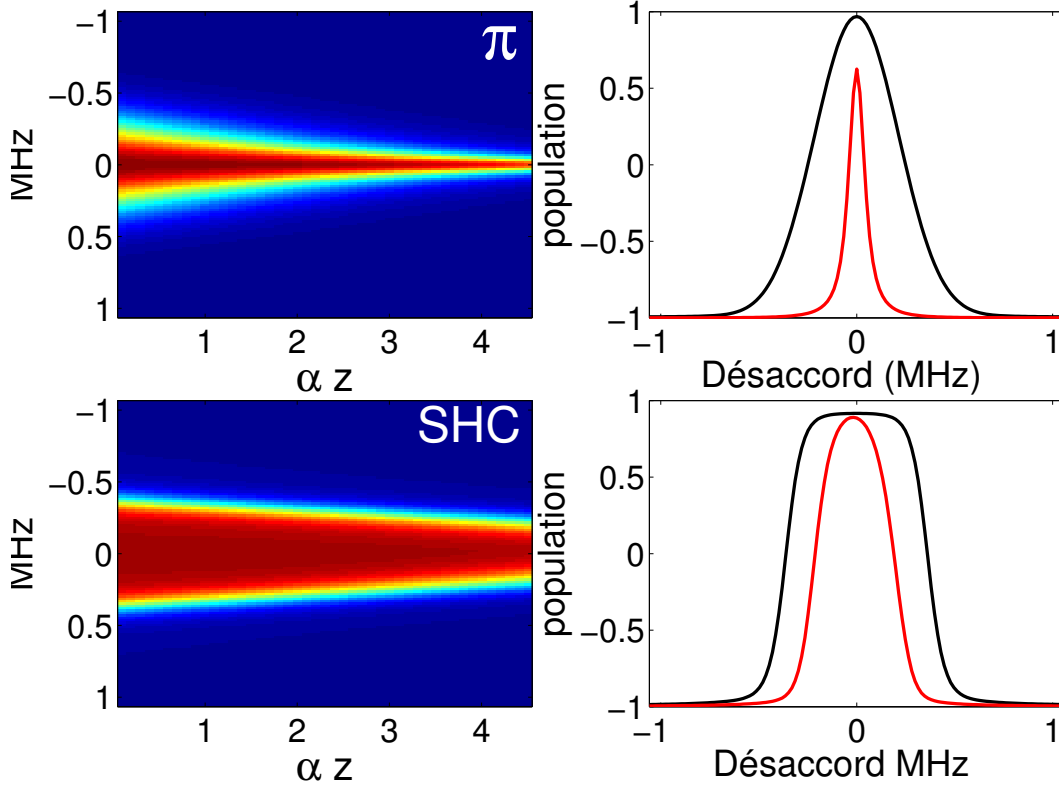


FIGURE 40 – Profil d'inversion obtenue après une impulsion gaussienne (en haut) d'aire π (durée 500ns) et une SHC en bas ($\Omega_0 = 2\pi \times 400\text{kHz}$, $\beta = 2\pi \times 120\text{kHz}$ et $\mu = 3$). Sur la gauche, on a représenté le profil $w(\Delta, z, t \rightarrow +\infty)$ entre $z = 0$ et $\alpha z = 4.5$ en fonction de Δ . Sur la droite, les coupes du profil c-à-d $w(\Delta, 0, t \rightarrow +\infty)$ (en noir) et $w(\Delta, 4.5/\alpha, t \rightarrow +\infty)$ (en rouge).

condition d'adiabaticité et la limite de la décohérence. Je vais tâcher de le quantifier à partir de l'expérience.

À puissance maximale $\Omega_0 = 2\pi \times 240\text{kHz}$ pour cette série, on fait varier la durée de l'impulsion $1/\beta$ et la bande passante $2\mu\beta$. On observe la forme typique de l'inversion adiabatique en transmission (fig. 41).

On représente ici le profil spectral des populations en prenant le logarithme de la transmission (divisé par l'épaisseur optique $\alpha L = 1.5$ pour ce cristal dopé à 0.1%). Il s'agit donc d'un profil moyen sur la longueur du milieu. Pour cet exemple, la population centrale est de $\langle w \rangle = 0.34$. On peut ainsi définir une qualité d'inversion $\frac{\langle w \rangle + 1}{2} = 67\%$. La méthode est ici rendue imprécise par l'observation de *ring-down* (sur la fig. 41, on observe une réponse oscillante sur les fronts montants et descendants du profil). Pour mesurer la transmission au centre et déduire $\langle w \rangle$, on préférera utiliser une simple sonde monochromatique. Elle ne donne pas d'information sur le profil spectral, mais reste plus précise pour prédire la qualité d'inversion à résonance. On fait varier les paramètres β et μ en enregistrant la qualité d'inversion (fig. 42).

On constate qu'il est possible de maintenir une bonne inversion sur une large gamme de paramètres offrant ainsi une marge de manœuvre sur la bande passante. Les maxima

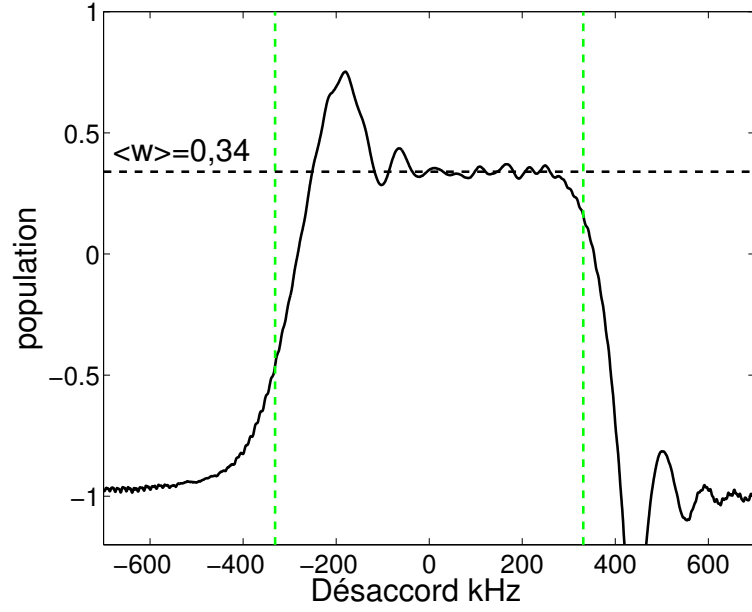


FIGURE 41 – Exemple du profil d’inversion obtenu par une SHC de paramètres $\Omega_0 = 2\pi \times 240\text{kHz}$, $\beta = 2\pi \times 46\text{kHz}$ et $\mu = 7.2$. Le profil est mesuré en transmission par un *sweep* du modulateur acousto-optique. On observe deux *ring-down* à cause du *sweep* trop rapide (taux de *sweep* $(140\text{kHz})^2$). Les lignes vertes représentent les bornes d’inversion $\mu\beta = 2\pi \times 331\text{kHz}$ et $-\mu\beta$.

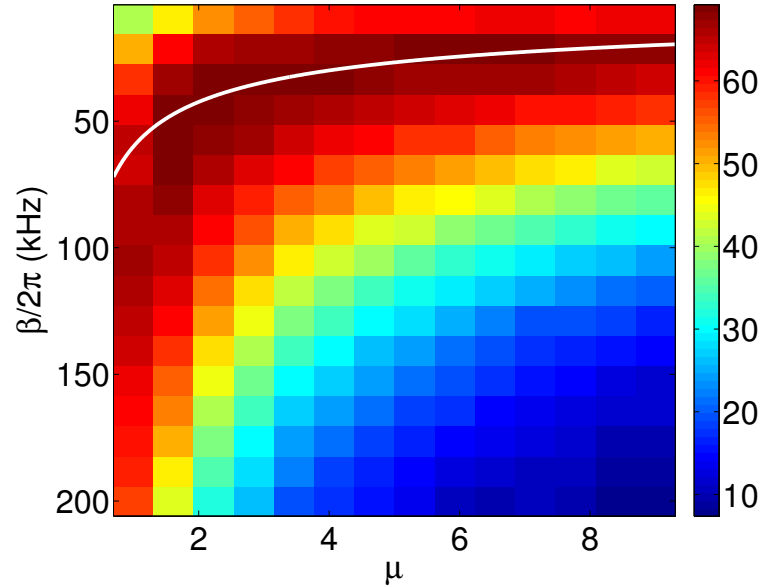


FIGURE 42 – Qualité d’inversion à résonance $\frac{\langle w \rangle + 1}{2}$ par mesure de transmission pour différentes valeurs des paramètres β et μ ($\Omega_0 = 2\pi \times 240\text{kHz}$). La courbe blanche correspond aux lieux tels que $\mu\beta^2 = \frac{1}{16}\Omega_0^2$.

sont répartis sur la courbe $\mu\beta^2 = \frac{1}{16}\Omega_0^2$ (en blanc sur la fig. 42). On estime ici à quel

point il faut satisfaire la condition d'adiabaticité (eq. 41). Ceci semble rester vrai pour des μ faibles (autour de 2), qui sont pourtant mal décrits par la formule 42 qui suppose $\mu \gg 1$. Il est difficile d'observer une bonne inversion pour β petit (et donc μ grand) car l'impulsion devient suffisamment longue pour être affectée par la décohérence.

Concernant la qualité d'inversion même, elle plafonne à 70-75% typiquement. Cette valeur est difficile à justifier contrairement à la forme des profils d'inversion (fig. 41) et l'aspect global de la cartographie (β, μ) (fig. 42). Les simulations numériques prennent à la fois en compte le possible caractère non adiabatique du suivi par la SHC ainsi que la décohérence. Cette dernière est encore plus faible pour un cristal dopé à 0.1% utilisé pour la dernière série d'expériences. Les simulations prédisent une inversion supérieure à 95%. Ce point est tout à fait problématique pour la réalisation du ROSE. Nous n'avons à l'heure actuelle aucune piste pour expliquer cette observation.

14.3 Impulsions fortes dans une cavité active

J'entame ici une partie plus prospective purement théorique qui peut constituer le début d'un projet de recherche. Le mémoire est dédié à l'interaction avec des ensembles. Le fort couplage est obtenu en prenant un milieu suffisamment épais. Une alternative aux ensembles dans le domaine des mémoires quantiques par exemple consiste à utiliser une particule unique dans une cavité QED (quantum electrodynamics). Sans aller jusqu'à cette extrémité, on peut imaginer utiliser un échantillon faiblement absorbant dans une cavité de finesse moyenne. C'est par exemple le sens de la proposition de M. Afzelius [Afzelius2010a] qui vise à réaliser l'AFC dans une cavité matchée (voir B.2). On peut alors bénéficier de l'avantage des milieux minces pour la préparation en effectuant le pompage optique sur le côté hors du mode de la cavité.

L'intérêt de cette configuration est réapparu récemment dans un contexte différent, celui du couplage de spin électronique avec des photons RF dans une cavité supraconductrice [Schuster2010, Kubo2010, Kubo2011, Amsüss2011]. La cavité permet dans ce cas d'atteindre un couplage important avec un échantillon de taille raisonnable. Pour une cavité matchée B.2, la réflexion étant nulle, toute l'information de l'impulsion incidente est donc transférée à l'échantillon. C'est un point-clé pour le stockage quantique par exemple. Dans ce contexte, la manipulation par des impulsions fortes, π ou SHC, semblent un oubli bien adapté pour les deux situations. Optique et RF sont ici formellement équivalentes.

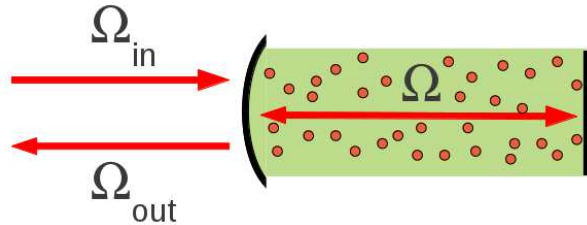


FIGURE 43 – Exemple de cavité contenant un milieu actif faiblement absorbant. La cavité assure le couplage fort. J'en fait une description formelle en annexe B.

La réponse d'une cavité active à une impulsion forte n'est a priori pas connue. On

ne peut parler de propagation, mais la question de la déformation des impulsions dans la cavité se pose en des termes similaires à la discussion 14.1.

Pour une impulsion π , une analyse énergétique suffit à s'en convaincre. On caractérise l'impulsion incidente par sa durée τ et sa fréquence de Rabi Ω_{inM} typique. Si l'impulsion est π dans la cavité, on aura $\Omega_M \tau \sim \sqrt{\kappa} \Omega_{\text{inM}} \tau \sim \pi$ où κ désigne le coefficient de transmission du miroir d'entrée comme défini sur 48 (annexe B). Ω_M désigne le champ intracavité. L'impulsion incidente contient une énergie typique (eq. 52) de :

$$U_\Omega \sim c \frac{\pi^2}{\kappa \tau}$$

Par ailleurs, l'énergie stockée dans les atomes remplissant la cavité de longueur L sur la bande-passante de l'impulsion $1/\tau$ sera (eq. 53)

$$U_w = c \frac{\alpha L}{\pi \tau}$$

Les deux sont précisément du même ordre pour une cavité matchée B.2. On attend donc une forte modification des impulsions d'aire forte après leur passage dans la cavité. C'est le sujet de l'analyse à suivre. J'étudie maintenant plus précisément la situation décrite formellement en B (cavité asymétrique de type Gires-Tournois).

14.3.1 Impulsions π intracavité

Je vais montrer ici que les impulsions π sont fortement déformées dans la cavité. On vient de voir qu'elles laissent une part importante de leur énergie dans le milieu. Elles sont également contraintes par le théorème de l'aire intracavité (voir fig. 44) que j'ai démontré en annexe (eq. 59).

On considère la cavité matchée. On obtient pour les aires Θ , Θ_{in} et Θ_{out} correspondant aux impulsions Ω , Ω_{in} et Ω_{out} respectivement :

$$\begin{aligned} \Theta - \frac{2}{\sqrt{\kappa}} \Theta_{\text{in}} &= -\sin(\Theta) \\ \Theta_{\text{out}} &= -\sqrt{\kappa} \Theta - \Theta_{\text{in}} \end{aligned} \tag{43}$$

On attend comme dans l'espace libre le phénomène de SIT lorsque l'aire intracavité est un multiple de 2π c-à-d pour Θ multiple de 2π et donc $\Theta_{\text{out}} = \Theta_{\text{in}}$ multiple de $\sqrt{\kappa}\pi$. Les impulsions π sont également singulières pour l'eq.43. Pour $\Theta = \pi$, l'aire est conservée $\Theta_{\text{out}} = \Theta_{\text{in}} = \frac{\sqrt{\kappa}}{2}\pi$. On attend de fortes distorsions en conséquence. Pour prédire la forme de l'impulsion de sortie, on a recours à une simulation numérique.

Pour le système de Bloch (eqs. 44), on néglige la décohérence et la durée de vie des populations que je suppose longues par rapport au temps de l'expérience. Pour prendre en compte numériquement l'intégrale sur l'élargissement inhomogène qui apparaît dans l'équation maîtresse 56, on développe la stratégie suivante : on écrit d'abord le système de Bloch pour n désaccords (eqs. 44). En y ajoutant l'équation maîtresse de la cavité 56, on obtient $(3n + 1)$ équations différentielles du premier ordre que l'on résout par la méthode classique de Runge-Kutta.

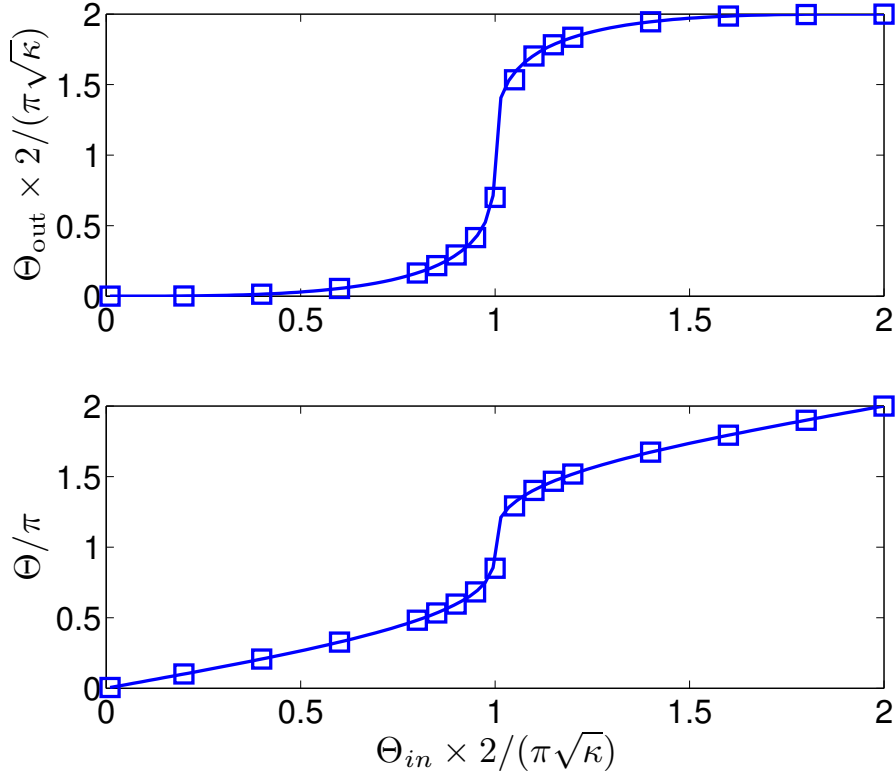


FIGURE 44 – Aire de sortie Θ_{out} (en haut) et aire intracavité Θ en fonction de l'aire incidente Θ_{in} (en bas) calculée à partir du théorème de l'aire (ligne continue, eqs. 59). Les carrés sont le produit d'une simulation numérique des profils de l'impulsion Ω et Ω_{out} à partir des eqs. 56 pour une impulsion Ω_{in} gaussien. Cette vérification permet de valider la simulation numérique.

Pour les applications numériques, on choisit une finesse de $\mathcal{F} = 500$ et un intervalle spectral libre de $\mathcal{D} = 2\pi \times 3$ GHz. Ces valeurs correspondent bien à l'excitation de spins électroniques dans des cavités supraconductrices [Schuster2010, Kubo2010, Kubo2011, Amsüss2011] mais pourraient aussi bien décrire un résonateur optique de quelques centimètres avec un milieu actif. La cavité est supposée matchée. Les impulsions monochromatiques sont choisies de forme gaussienne de durée fixe $2\mu s$. Leur bande passante $2\pi \times 80$ kHz est ici bien plus petite que la largeur de la cavité $\Delta\omega_{\text{cav}} = 2\pi \times 6$ MHz. J'en fais varier l'amplitude pour changer l'aire de l'impulsion incidente. Je valide ma simulation en calculant l'aire de l'impulsion de sortie Θ_{out} que je compare au théorème de l'aire (fig. 44).

On s'intéresse plus particulièrement à l'étirement des impulsions π . J'ai représenté sur la figure 45 les différents profils Ω , Ω_{in} et Ω_{out} pour des aires incidentes de $\Theta_{\text{in}} = \frac{\sqrt{\kappa}}{2}\pi$ (impulsion π) et $\Theta_{\text{in}} = 0.6\frac{\sqrt{\kappa}}{2}\pi$.

L'impulsion d'aire $\Theta_{\text{in}} = \frac{\sqrt{\kappa}}{2}\pi$ s'étire fortement ce qui était prévisible à partir de notre analyse sur l'aire. Celle d'aire plus faible est principalement atténuée.

Afin de mieux quantifier l'effet d'étirement, j'ai représenté sur la figure 46 la largeur rms de l'impulsion de sortie Ω_{out} à comparer à celle d'entrée fixée à $2\mu s$.

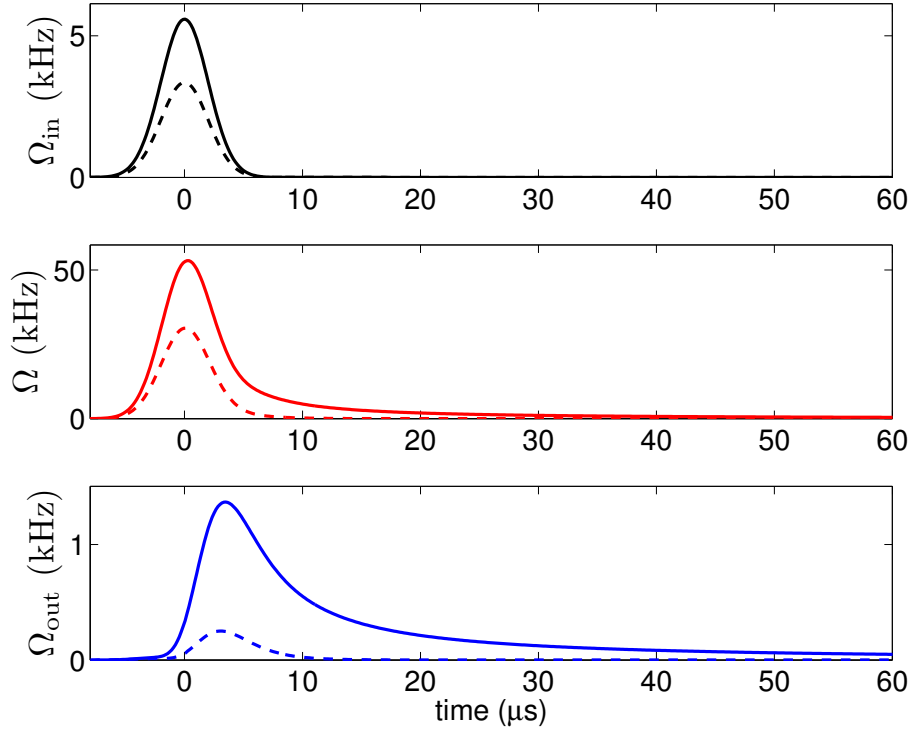


FIGURE 45 – En haut, les impulsions gaussiennes incidentes Ω de durée $2\mu s$ et d'aire $\Theta_{in} = \frac{\sqrt{\kappa}}{2}\pi$ (impulsion π , trait plein) et $\Theta_{in} = 0.6\frac{\sqrt{\kappa}}{2}\pi$ (pointillés). Au milieu, les profils intracavité Ω . En bas, les impulsions en sortie Ω_{out} .

J'ai aussi représenté (fig. 46, en bas) le maximum de l'impulsion de sortie normalisé par rapport à l'entrée. On identifie bien les deux cas limites. Lorsque $\Theta_{in} \rightarrow 0$, la réflexion est nulle car la cavité est matchée. Lorsque $\Theta_{in} = \sqrt{\kappa}\pi$, on est en régime de SIT, l'impulsion ressort sans déformation, avec un retard typique du phénomène [Allen1987].

La déformation des impulsions π peut être un problème pour des manipulations cohérentes intracavité. Elle peut être source de bruit pour du stockage quantique tant il devient difficile d'isoler un signal quantique d'une impulsion de rephasage. L'étirement induit aussi un affinement spectral de la bande d'interaction. Il est donc important comme dans l'espace libre que l'impulsion de rephasage soit initialement bien plus courte que le signal pour assurer un bon recouvrement spectral malgré l'étirement.

14.3.2 Inversion par des impulsions SHC intracavité

Je reprends ici le problème de l'étirement des impulsions π dans le domaine temporel (affinement spectral). L'idée est à nouveau de remplacer les impulsions monochromatiques par des SHC dont on a vu l'intérêt en 14.2. On en rappelle la définition rapidement : leur enveloppe complexe est donnée par la notation compacte $\Omega_{in}(t) = \Omega_{in0} \operatorname{sech}^{(1-i\mu)}(\beta t)$ où $2\mu\beta$ est leur bande passante et $1/\beta$ leur durée.

En prenant $\mu = 0$, on traite le cas monochromatique avec une impulsion de forme sécante hyperbolique réelle dont le comportement est comparable aux gaussiennes (fig.

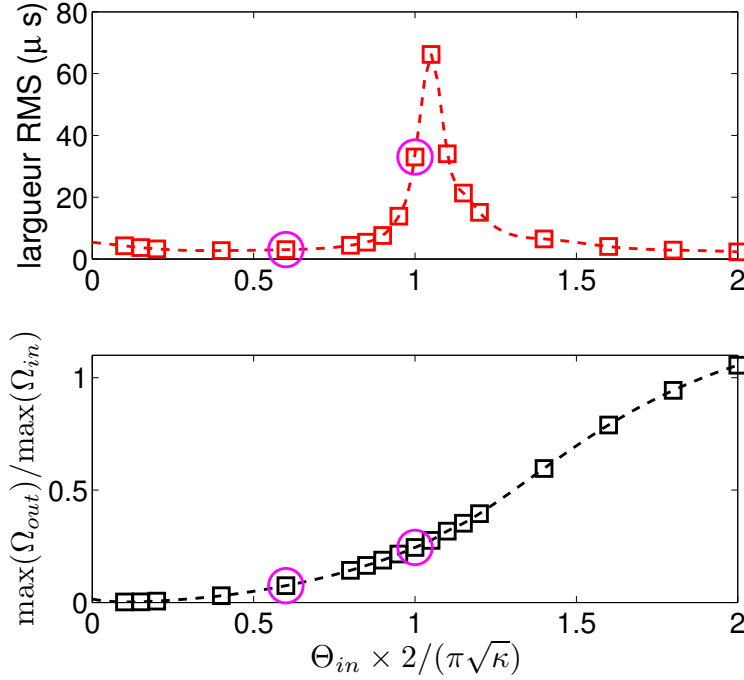


FIGURE 46 – En haut, largeur RMS de l’impulsion de sortie Ω_{out} pour différentes aires incidentes. En bas, rapport des maxima de l’impulsion de sortie et de celle d’entrée. Les cercles correspondent aux profils de la figure 45. La courbe n’est pas exactement piquée pour $\frac{\sqrt{\kappa}}{2}\pi$ ce qui est surprenant. On ne peut pas exclure une limite de la simulation numérique qui requière un intervalle temporel trop long pour des impulsions très étirées.

46). Pour montrer l’intérêt des SHC, on va donc partir de $\mu = 0$ (fig. 47).

On impose une durée $1/\beta_0 = 2\mu s$ comme précédemment ainsi que $\Omega_{\text{in}0} = \beta_0 \frac{\sqrt{\kappa}}{2}$. Il s’agit d’une impulsion π avec $\Theta_{\text{in}} = \frac{\sqrt{\kappa}}{2}\pi$. On va ensuite augmenter μ en gardant la bande passante constante $\mu\beta = \beta_0 = \frac{1}{2\mu s} \sim 2\pi \times 80\text{kHz}$ et l’amplitude constante. Satisfaire la condition d’adiabaticité (eq. 41) se résume à augmenter μ pour avoir $\mu \gg 1$. On trace le profil d’inversion $w(\Delta, t \rightarrow +\infty)$ après le passage des impulsions pour des valeurs de μ croissante (fig. 47).

L’impulsion π ($\mu = 0$) inverse le milieu sur un intervalle spectral fin qui traduit l’étirement de l’impulsion monochromatique. À mesure qu’on augmente μ , la condition d’adiabaticité est d’autant mieux satisfaite. L’inversion augmente de façon uniforme sur la bande $[-\mu\beta; \mu\beta] = 2\pi \times [-80, 80]\text{kHz}$. Le spectre tend vers un profil d’inversion adiabatique typique (eq. 42). On retrouve la même tendance pour un milieu épais dans l’espace libre (voir fig. 40). On constate aussi un trou au centre qui s’estompe à mesure que μ augmente. Son origine n’est pas claire à l’heure où j’écris. Un artefact numérique semble exclu. Une étude plus poussée est digne d’intérêt puisqu’il s’agit d’une différence qualitative importante avec la situation en espace libre.

On constate malgré cela la supériorité des SHC en cavité. Elles sont finalement un outil particulièrement puissant pour la manipulation cohérente lorsque la contrainte nécessaire de couplage fort avec un ensemble ou en cavité peut poser des problèmes de

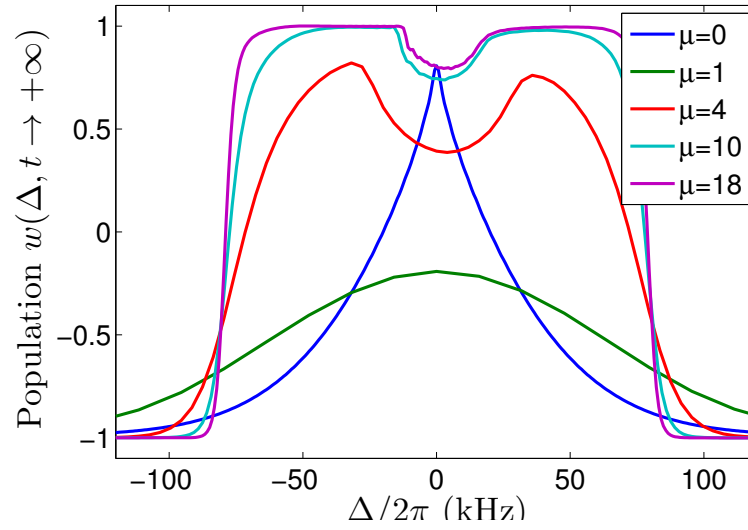


FIGURE 47 – Profil d'inversion des populations $w(\Delta, t \rightarrow +\infty)$ après le passage d'impulsions SHC pour $\mu = 0, 1, 4, 10, 18$. Pour $\mu = 0$, l'impulsion est monochromatique d'aire π .

propagation d'impulsions rephasantes. Elles sont peu utilisées en optique ce qui est fort dommage.

Cinquième partie

Ouverture et perspectives générales

Sommaire

15 L'avenir du ROSE	97
16 Utilisation possible d'une cavité de finesse moyenne	97
17 Applications nouvelles pour le hole-burning	98

Afin de conclure, je souhaite résumer et brièvement développer les différents projets que j'ai esquissés dans le mémoire.

15 L'avenir du ROSE

En 5.3, j'ai fait un bilan des expériences sur le protocole ROSE. L'étude la plus poussée a été menée sur $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. La conclusion est mitigée, car l'origine du bruit par émission spontanée est mal comprise et donc difficile à réduire. Des résultats préliminaires sur $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ sont prometteurs puisque la qualité de la double inversion semble meilleure. Les cristaux dopés erbium sont des matériaux de choix, car ils sont directement compatibles avec les longueurs d'onde télécoms¹⁶.

Ce n'est pas le seul avantage du matériau. Il est en effet possible d'obtenir sous champ magnétique des temps cohérences longs, T_2 de l'ordre de la milliseconde [Böttger2006, Böttger2002]. On peut à partir de là faire une estimation de la bande-passante accessible.

Nous utilisons pour le protocole des impulsions SHC étudiées en 14.2. Leur bande passante est $2\mu\beta$. La bande passante du protocole sera alors limitée par la condition d'adiabaticité d'un côté (eq. 41) que l'on écrit $2\mu\beta < 2\Omega_0^2/\beta$ et la durée de l'impulsion $1/\beta$ contrainte par T_2 de l'autre. La bande passante sera donc de l'ordre de

$$\Omega_0^2 T_2$$

Il est par ailleurs possible d'obtenir des fréquences de Rabi de l'ordre du MHz dans $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ car la force de raie est importante d'une part et la puissance disponible à cette longueur d'onde particulièrement confortable. Avec $T_2 \sim 1\text{ms}$, on peut espérer une bande passante du ROSE de l'ordre d'une fraction de GHz.

Cette conclusion optimiste doit aussi stimuler l'amélioration des matériaux. La largeur inhomogène d' $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ est de l'ordre de 500MHz [Böttger2002] ce qui peut être un facteur limitant. Un enjeu fort est d'augmenter la largeur inhomogène tout en conservant un temps de cohérence long (largeur homogène). Une voie possible serait d'introduire un désordre contrôlé dans le matériau afin de produire des inhomogénéités locales. On augmente ainsi la largeur inhomogène, mais on peut espérer de façon surprenante augmenter la cohérence qui est actuellement limitée par des interactions résonnantes entre ions [Böttger2006], rendues non résonnantes par la présence du désordre.

16 Utilisation possible d'une cavité de finesse moyenne

La partie 14.3 visait essentiellement à montrer les possibilités de contrôle cohérent intracavité. On voit une similitude remarquable entre un milieu épais et une cavité active, dont le théorème de l'aire (eqs. 59) est une manifestation. On peut imaginer transposer les différents protocoles de II comme l'a proposé M. Afzelius [Afzelius2010a] pour l'AFC. L'utilisation d'une cavité de moyenne finesse (quelques centaines) est prometteuse, car

16. 1536nm pour $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$

elle est d'une part moins exigeante qu'une cavité QED avec une particule unique et elle permet d'autre part d'utiliser des échantillons faiblement absorbants. Il n'est en effet pas toujours facile d'obtenir des échantillons optiquement épais de taille physique raisonnable ($\sim$ cm). Les milieux très absorbants sont aussi très difficiles à préparer par pompage optique. Un échantillon mince optiquement et physiquement pourra en revanche être préparé par pompage sur le côté.

Des tentatives expérimentales ont été faites dans cette direction avec des cristaux dopés. Elles impliquent $\text{Pr}^{3+}:\text{YSO}$ avec des cavités monolithiques de formes différentes : Fabry-Perot plan-concave [Ichimura2006, Goto2010] ou bien sphéroïdale à mode de galerie [McAuslan2009, McAuslan2011a]. Sans aller dans le régime de cavité QED, elles permettent d'estimer la finesse possible d'une cavité cristalline. McAuslan obtient 10^6 [McAuslan2011a] ce qui est remarquable. Pour des échantillons plus grands, Goto obtient 1000 environ [Goto2010]. Prenons cette dernière comme référence réaliste. Pour satisfaire la condition de *matching* (eq. 58) avec un échantillon moyennement absorbant $\alpha \sim 1\text{cm}^{-1}$ (comme $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$)¹⁷, il suffit d'un cristal de $5\text{ }\mu\text{m}$. Il est exclu d'avoir une cavité de cette taille dont les modes seront tellement espacés qu'il est très improbable de les faire coïncider avec la bande d'absorption du matériau. On peut en revanche imaginer un résonateur accordable plus grand que l'échantillon.

On voit la marge de manœuvre qu'apporte la cavité. L'utilisation de matériaux solides malgré la contrainte cryogénique offre clairement de nombreuses possibilités par rapport aux vapeurs atomiques qui restent difficiles à contenir dans un résonateur. S'ouvre alors face à nous tout le bestiaire des *designs* possibles de la cavité, source d'inspiration pour une réflexion qui démarre seulement.

17 Applications nouvelles pour le hole-burning

Je reviens très brièvement sur les deux applications présentées en III avec d'une part la tomographie optique modulée par ultrason en 10 et l'asservissement laser sur un trou spectral en 11. On voit dans les deux cas l'intérêt de disposer de transitions étroites dont la préparation se fait par *hole-burning* spectral (SHB). Les deux projets sont bien balisés avec d'un côté une étude préliminaire [Louchet-Chauvet2011] étayée par des résultats expérimentaux encourageants en 10.2.2 et de l'autre des réalisations d'autres groupes [Thorpe2011, Chen2011]. Ces applications rentrent toutes deux dans le même contexte. On a vu dans les deux cas, les contraintes fortes que peut imposer l'utilisation de cryostat en circuit fermé.

La présence et la compréhension des vibrations discutées en 12 n'est pas qu'un simple enjeu technologique. C'est aussi un enjeu fondamental. On l'a vu, il n'est pas évident de prédire la dépendance du cristal aux contraintes extérieures statiques ou dynamiques. C'est le cœur du projet 11 qui vise en quelque sorte à réduire l'impact des vibrations. On peut aussi changer complètement de point de vue et exploiter au contraire cette forte dépendance. Il y a à l'heure actuelle un foisonnement autour des systèmes couplés optomécanique dont il est difficile de couvrir la bibliographie tant elle est abondante [Marquardt2009]. Une voie intéressante s'est ouverte plus récemment en

17. À titre de comparaison, l'absorption peut atteindre plusieurs dizaines de cm^{-1} dans $\text{Pr}^{3+}:\text{YSO}$ massif [Equall1995].

considérant des systèmes hybrides où la vibration mécanique est couplée à l'excitation d'un système atomique à deux niveaux [Wilson-Rae2004, Hammerer2009, Rabl2009, Hunger2010, Bennett2010, Arcizet2011]. Les ions de terre rare sont remarquables par la finesse de leur transition ce qui les rend intéressants pour le couplage optomécanique. Le caractère cristallin de la matrice est clairement avantageux pour obtenir des modes de vibrations étroits également. Ces deux constats simples, mais peu aboutis peuvent être le point de départ d'une ouverture passionnante vers une autre communauté.

Bref, nous avons du pain sur la planche ...

J'ai des doutes
Est-ce-que vous en avez ?

Le Secret Des Banquises
ALAIN BASHUNG

Sixième partie

Annexes

Sommaire

A	Rappel des équations de propagation	102
A.1	Équations de Bloch	102
A.2	Équation de Maxwell	102
A.3	Propagation en régime perturbatif	103
A.3.1	Régime perturbatif	103
A.3.2	Propagation d'une impulsion d'aire faible	104
A.4	Propagation cohérente : lois de conservation	104
A.4.1	Conservation de l'énergie	104
A.4.2	Théorème de l'aire de McCall et Hahn	105
B	Manipulation de dipôles dans une cavité de type Gires-Tournois	106
B.1	Équations du GTI actif	106
B.2	Réponse cohérente en régime perturbatif - Cavité matchée	107
B.3	Théorème de l'aire intracavité	107

A Rappel des équations de propagation

Je rappelle ici d'une part les équations de Bloch optiques et d'autre part l'équation de Maxwell linéarisée afin d'établir une notation commune à l'ensemble du mémoire. Ce formalisme suffit à décrire l'ensemble des phénomènes qui nous intéressent en propagation dans un milieu épais optiquement. Je reprends les conventions utilisées par Allen et Eberly dans leur ouvrage de référence [Allen1987].

On considère ici un ensemble d'atomes à deux niveaux qui présente un élargissement inhomogène. La propagation sera considérée suivant une seule dimension z . L'enveloppe complexe du champ laser sera directement décrite par sa fréquence de Rabi dépendant du temps $\Omega(z, t)$ ($\Re()$ et $\Im()$ désigne ses parties réelle et imaginaire).

A.1 Équations de Bloch

Concernant l'évolution du système atomique, j'utilise le formalisme du vecteur de Bloch donc les deux premières composantes u et v représentent la partie en phase et hors de phase (quadrature) de la cohérence atomique. La dernière composante w est la différence de population.

On introduit la décroissance phénoménologique des populations et des cohérences par les taux $1/T_1$ et $\gamma = 1/T_2$. Le système dans l'approximation de l'onde tournante se résume à

$$\begin{aligned} \dot{u}(\Delta, z, t) &= -\Delta v(\Delta, z, t) - \frac{u(\Delta, z, t)}{T_2} \\ \dot{v}(\Delta, z, t) &= \Delta u(\Delta, z, t) - \Omega(z, t) w(\Delta, z, t) + \frac{v(\Delta, z, t)}{T_2} \\ \dot{w}(\Delta, z, t) &= -\Re(\Omega(z, t)) v(\Delta, z, t) + \Im(\Omega(z, t)) u(\Delta, z, t) - \frac{w(\Delta, z, t) + 1}{T_1} \end{aligned} \quad (44)$$

Δ désigne le désaccord laser à la résonance atomique.

On préférera généralement faire apparaître la polarisation complexe notée $r(\Delta, z, t) = u(\Delta, z, t) + i v(\Delta, z, t)$ [Allen1987] pour décrire l'évolution des cohérences.

$$\dot{r}(\Delta, z, t) = (i\Delta - \gamma)r(\Delta, z, t) + i\Omega(z, t) w(\Delta, z, t) \quad (45)$$

Ce terme apparaît alors comme source dans l'équation de Maxwell.

A.2 Équation de Maxwell

On suppose que l'ensemble atomique présente un élargissement inhomogène $g(\Delta)$. L'émission des atomes apparaît comme une intégrale, somme des différentes contributions sur la largeur inhomogène. On linéarise ensuite l'équation de Maxwell en supposant

l'enveloppe lentement variable, on obtient alors au premier ordre

$$\frac{\partial \Omega(z, t)}{\partial z} + \frac{\partial \Omega(z, t)}{c \partial t} = -\frac{i\alpha}{2\pi} \int_{\Delta} g(\Delta) r(\Delta, z, t) \quad (46)$$

α désigne ici le coefficient d'absorption du milieu qui traduit la force du couplage des atomes au champ.

On retrouve en toute généralité le cas homogène en imposant $g(\Delta) = \pi\gamma\delta_0$ où δ_0 désigne la distribution de Dirac.

A.3 Propagation en régime perturbatif

Je rappelle ici un cas particulier que nous retrouvons dans le mémoire. Il s'agit de déterminer la propagation d'une impulsion plus courte que le temps de cohérence T_2 mais dont la bande passante reste malgré tout plus étroite que la largeur inhomogène.

A.3.1 Régime perturbatif

On suppose ici que les populations ne sont pas modifiées au premier ordre par l'impulsion dans le milieu. Pour l'étude de la propagation cohérente, on parlera ensuite d'aires faibles par opposition aux aires fortes où on observe par exemple des oscillations de Rabi des populations. En régime perturbatif, les populations gardent leur valeur à l'équilibre $w(\Delta, z, t) = -1$. On résout simplement le système de Bloch-Maxwell en notant $\mathcal{E}(z, t)$ l'enveloppe du champ.

La solution pour la polarisation dans le domaine temporel s'écrit sous forme intégrale :

$$r(\Delta, z, t) = -i \exp(-i\Delta t) \int_{-\infty}^t \mathcal{E}(z, t') \exp(i\Delta t') dt' \quad (47)$$

J'ai écrit ici la solution directement dans la limite de propagation cohérente $\gamma \rightarrow 0$.

Ou bien de façon plus complète et compacte dans l'espace de Fourier¹⁸.

$$\tilde{r}(\Delta, z, \omega) = \frac{\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{i\gamma - (\omega - \Delta)} \quad (48)$$

avec pour l'eq. 46 :

$$\frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{\partial z} + i\frac{\omega}{c} \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) = -\frac{i\alpha}{2\pi} \int_{\Delta} g(\Delta) \frac{\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{i\gamma - (\omega - \Delta)} \quad (49)$$

18. On définit la transformée de Fourier par les formules :

$$\tilde{x}(\omega) = \int_t x(t) \exp(i\omega t) dt \text{ et } x(t) = (1/2\pi) \int_{\omega} \tilde{x}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega$$

A.3.2 Propagation d'une impulsion d'aire faible

Lorsque la bande passante est bien plus grande que γ (propagation cohérente), on reconnaît dans l'intégrale une représentation de la fonction de Dirac quand $\gamma \rightarrow 0$. On va aussi supposer que la bande passante reste malgré tout plus petite que l'élargissement inhomogène de telle sorte que la distribution est constante sur cet intervalle. On choisit ainsi $g(\omega) = 1$ sur la bande comme condition de normalisation ce qui revient à englober le maximum de la distribution inhomogène dans le coefficient d'absorption.

On retrouve la loi usuelle d'absorption de Bouguer-Beer-Lambert [Bouguer1729, Lambert1760, Beer1852].

$$\frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)}{\partial z} + i \frac{\omega}{c} \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) = -\frac{\alpha}{2} \tilde{\mathcal{E}}(z, \omega) \quad (50)$$

A.4 Propagation cohérente : lois de conservation

Lorsqu'on sort du régime perturbatif, il n'est plus possible de résoudre analytiquement le système de Bloch-Maxwell. Une résolution numérique est alors nécessaire. On peut malgré tout dériver deux lois de conservation salvatrices pour guider la discussion physique.

A.4.1 Conservation de l'énergie

La conservation de l'énergie est particulièrement utile pour analyser la propagation cohérente. Cette dernière n'existe par définition qu'en l'absence de dissipation. Les atomes ne sont couplés qu'à un mode du champ, autrement dit, oscillateurs atomiques et champ lumineux échangent de façon cohérente l'énergie. Ce constat est évidemment inclus dans le modèle de Bloch-Maxwell même si notre choix d'unités réduites peut cacher le fait qu'un photon $\hbar\omega$ induit l'inversion de population $w(\Delta, z, t)$ d'un seul atome.

Il n'est cependant pas difficile de retrouver cette loi de conservation en intégrant le système 44-46. L'énergie portée par le champ électromagnétique sera donnée par $U_\Omega = \int_z \Omega^*(z, t) \Omega(z, t)$. L'équation 46 fait apparaître sa dérivée temporelle sous la forme

$$\begin{aligned} \frac{\partial U_\Omega}{c \partial t} &= -\frac{\alpha}{\pi} \int_\Delta \int_z g(\Delta) [-\Re(\Omega(z, t)) v(\Delta, z, t) + \Im(\Omega(z, t)) u(\Delta, z, t)] \\ &= -\frac{\alpha}{\pi} \int_\Delta \int_z g(\Delta) \dot{w}(\Delta, z, t) \end{aligned} \quad (51)$$

On redérive ici la loi de conservation entre

$$U_\Omega = \int_z \Omega^*(z, t) \Omega(z, t) \quad (52)$$

l'énergie portée par l'impulsion incidente et

$$U_w = \frac{\alpha c}{\pi} \int_z \int_\Delta g(\Delta) (w(\Delta; z, t) + 1) \quad (53)$$

celle contenue dans les populations atomiques. On la normalise à zéro quand les atomes sont dans l'état fondamental.

A.4.2 Théorème de l'aire de McCall et Hahn

Le théorème de l'aire de McCall et Hahn [McCall1967] est mal connu, mais est un pilier de la propagation cohérente pour des impulsions fortes. Il ne permet pas de prédire la forme exacte des impulsions en sortie du milieu, mais il nous donne une information globale sur son aire $\Theta(z) = \int_t \Omega(z, t) dt$. Pour l'obtenir [Allen1987, Eberly1998], on intègre directement l'équation de Maxwell 46.

Le terme en $\frac{\partial \Omega(z, t)}{c \partial t}$ disparaît après intégration pour une impulsion. Seul persiste le terme source $\int_t \int_{\Delta} g(\Delta) r(\Delta, z, t)$ que l'on écrit à partir de la solution intégrale du système de Bloch pour la polarisation 45

$$-\frac{i\alpha}{2\pi} \int_t \int_{\Delta} g(\Delta) r(\Delta, z, t) = \frac{\alpha}{2\pi} \int_{\Delta} \int_t \int_{t' < t} g(\Delta) \Omega(z, t') w(\Delta, z, t') \exp(i\Delta(t' - t)) \quad (54)$$

On reconnaît dans le terme $\frac{1}{2\pi} \int_{\Delta} g(\Delta) \Omega(z, t') w(\Delta, z, t') \exp(i\Delta(t' - t))$ une représentation de la fonction de Dirac $g(0)w(0, z, t')\delta_{t=t'}$. On choisit à nouveau $g(0) = 1$ au centre en englobant le maximum de la distribution inhomogène dans le coefficient d'absorption. Il n'apparaît alors plus que la population au centre de la bande passante (à résonance) dont la solution exacte est donnée par les oscillations de Rabi $w(0, z, t') = -\cos\left(\int_{-\infty}^{t'} \Omega(z, t) dt\right)$. L'intégration du terme $w(0, z, t')\Omega(z, t')$ fait donc apparaître le sinus de l'aire $\sin \Theta(z)$. On obtient finalement le théorème de l'aire de McCall et Hahn :

$$\frac{\partial \Theta(z)}{\partial z} = -\frac{\alpha}{2} \sin \Theta(z) \quad (55)$$

Le résultat est remarquable de simplicité et particulièrement utile pour comprendre la propagation des impulsions fortes. On reconnaît facilement le cas perturbatif A.3.1 aux aires faibles $\sin \Theta(z) \rightarrow \Theta(z)$. On obtient une loi d'absorption pour l'aire qui traduit juste l'atténuation de l'amplitude d'une impulsion qui conserve sa forme.

B Manipulation de dipôles dans une cavité de type Gires-Tournois

On vient de voir les équations qui régissent l'interaction matière-rayonnement dans l'espace libre. Nous allons maintenant considérer leur équivalent intracavité. Il s'agit d'une alternative intéressante aux milieux optiquement épais pour lesquels le couplage important vient de la densité d'atomes. On peut de façon intermédiaire se coupler fortement à peu d'atomes dans une cavité Fabry-Perot. A l'extrême, un seul émetteur peut être couplé au champ pour entrer dans le domaine de la CQED (Cavity Quantum ElectroDynamics).

On se place dans la situation intermédiaire d'un milieu faiblement absorbant dans une cavité. Le résonateur est choisi complètement asymétrique (fig. 48) avec un côté totalement réfléchissant.

Ce type de résonateur est connu en optique sous le nom d'interféromètre de Gires-Tournois (GTI) [Gires1964]. On utilise cette terminologie.

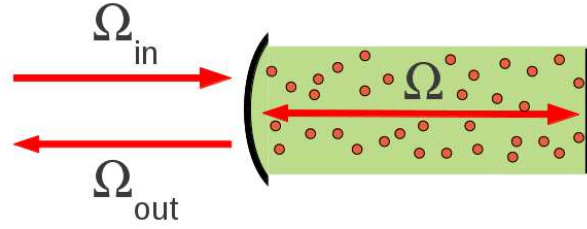


FIGURE 48 – Interféromètre de Gires-Tournois [Gires1964] contenant un milieu actif. L'absorption sur un aller-retour est supposée faible. On peut donc définir un champ intracavité uniforme au moyen de sa fréquence de Rabi $\Omega(t)$. Idem pour le champ incident et sortant (réfléchi) avec $\Omega_{in}(t)$ et $\Omega_{out}(t)$ respectivement.

Le système couplé atomes-champ est décrit de façon analogue à l'espace libre avec les systèmes de Maxwell-Bloch. On en rappelle le résultat.

B.1 Équations du GTI actif

Le milieu est décrit d'une part par l'équation de Bloch qui régit l'interaction des dipôles avec le champ intracavité et d'autre part par l'équation du champ intracavité nourrit par le champ incident et l'émission des atomes [Gorshkov2007b, Walls1995]. On suppose qu'un élargissement inhomogène $g(\Delta)$ est présent.

Les équations de Bloch (eqs. 44) restent inchangées et perdent seulement leur dépendance en z puisqu'il n'y a plus de propagation.

Les relations d'entrée-sortie dépendent du coefficient de transmission κ du miroir d'entrée et de l'intervalle spectral libre $\mathcal{D} = \frac{c}{2L}$ où L est la longueur du résonateur [Walls1995].

$$\begin{aligned}\frac{2\pi}{\mathcal{D}} \frac{\partial \Omega}{\partial t} &= -\frac{\kappa}{2} \Omega + \sqrt{\kappa} \Omega_{\text{in}} - 2i\alpha L \int_{\Delta} g(\Delta) r(\Delta, t) d\Delta \\ \Omega_{\text{out}} &= \sqrt{\kappa} \Omega - \Omega_{\text{in}}\end{aligned}\quad (56)$$

Les équations peuvent se généraliser sans peine au cas symétrique. Le GTI garde une spécificité intéressante lorsqu'on examine sa réponse spectrale.

B.2 Réponse cohérente en régime perturbatif - Cavité matchée

On s'intéresse à la réponse cohérente ($\gamma \rightarrow 0$) de la cavité en régime perturbatif : les populations ne sont pas modifiées au premier ordre et valent donc -1 (A.3.1). Le système est alors caractérisé par sa réponse spectrale $\tilde{\Omega}_{\text{out}} = r(\omega) \tilde{\Omega}_{\text{in}}$ où $r(\omega)$ est le coefficient de réflexion, avec

$$r(\omega) = \frac{\kappa - 4\pi\alpha L - 4i\pi\omega/\mathcal{D}}{\kappa + 4\pi\alpha L + 4i\pi\omega/\mathcal{D}} \quad (57)$$

On retrouve la forme des pics de réflexion habituels pour une cavité Fabry-Perot dans la limite $\alpha L = 0$. On peut alors définir la largeur spectrale du GTI passif $\Delta\omega_{\text{cav}}$ comme la largeur totale à mi-hauteur du pic de $|r(\omega)|^2$. $\Delta\omega_{\text{cav}}$ donne la bande passante d'interaction. On définit ainsi la finesse $\mathcal{F} = \frac{2\pi}{\kappa}$.

La cavité est matchée lorsque le coefficient de réflexion est nul. La bande passante de l'impulsion doit être plus étroite que $\Delta\omega_{\text{cav}}$. La condition de *matching* s'écrit :

$$4\pi\alpha L = \kappa \Leftrightarrow 2\alpha L = \frac{1}{\mathcal{F}} \quad (58)$$

autrement dit l'absorption sur un aller-retour est égale à l'inverse de la finesse. C'est un point remarquable du GTI actif.

B.3 Théorème de l'aire intracavité

On a vu l'utilité du théorème de l'aire de McCall et Hahn A.4.2 pour décrire la propagation d'impulsions non perturbatives. Un analogue existe pour le modèle en cavité¹⁹. Sa démonstration se calque exactement sur A.4.2. On obtient finalement :

$$\begin{aligned}\frac{\kappa}{2} \Theta - \sqrt{\kappa} \Theta_{\text{in}} &= -2\pi\alpha L \sin(\Theta) \\ \Theta_{\text{out}} &= \sqrt{\kappa} \Theta - \Theta_{\text{in}}\end{aligned}\quad (59)$$

Aux aires faibles, on retrouve l'expression du coefficient de réflexion à résonance (eq. 57).

19. Sauf erreur de ma part et malgré sa simplicité, il n'a pourtant jamais été évoqué pour décrire l'excitation intracavité.

Septième partie

Articles

Sommaire

C	Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories	109
D	Quantum Memory with a controlled homogeneous splitting	114
E	Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol	128
F	Revival of silenced echo and quantum memory for light	137
G	Efficiency optimization for atomic frequency comb storage	150
H	$\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ investigated for a quantum light storage application	161
I	Coherent response to optical excitation in a strongly absorbing rare-earth ion-doped crystal	169

C Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories

T. Chanelière, D. Matsukevich, S. Jenkins, S. Lan, T. Kennedy, A. Kuzmich. Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories. *Nature*, 438(7069), 833–836 (2005) [Chanelière2005a].

LETTERS

Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories

T. Chanelière¹, D. N. Matsukevich¹, S. D. Jenkins¹, S.-Y. Lan¹, T. A. B. Kennedy¹ & A. Kuzmich¹

An elementary quantum network operation involves storing a qubit state in an atomic quantum memory node, and then retrieving and transporting the information through a single photon excitation to a remote quantum memory node for further storage or analysis. Implementations of quantum network operations are thus conditioned on the ability to realize matter-to-light and/or light-to-matter quantum state mappings. Here we report the generation, transmission, storage and retrieval of single quanta using two remote atomic ensembles. A single photon is generated from a cold atomic ensemble at one site¹, and is directed to another site through 100 metres of optical fibre. The photon is then converted into a single collective atomic excitation using a dark-state polariton approach². After a programmable storage time, the atomic excitation is converted back into a single photon. This is demonstrated experimentally, for a storage time of 0.5 microseconds, by measurement of an anti-correlation parameter. Storage times exceeding ten microseconds are observed by intensity cross-correlation measurements. This storage period is two orders of magnitude longer than the time required to achieve conversion between photonic and atomic quanta. The controlled transfer of single quanta between remote quantum memories constitutes an important step towards distributed quantum networks.

A quantum network, consisting of quantum nodes and interconnecting channels, is an outstanding goal of quantum information science. Such a network could be used for distributed computing or for the secure sharing of information between spatially remote parties^{1,3–7}. While it is natural that the network's fixed nodes (quantum memory elements) could be implemented by using matter in the form of individual atoms or atomic ensembles, it is equally natural that light fields be used as carriers of quantum information (flying qubits) using optical fibre interconnects. The matter–light interface seems inevitable since the local storage capability of ground state atomic matter cannot be easily recreated with light fields. Interfacing material quanta and single photons is therefore a basic primitive of a quantum network.

The potential of atomic ensembles to serve as quantum memories has recently attracted considerable attention^{1,2,8–11}, spawning two distinct lines of research. In one, using the physics of ‘slow light’ propagation in an optically thick atomic ensemble, weak coherent laser pulses have been stopped and retrieved in a controlled fashion^{2,12–14}. In the other, motivated by the seminal proposal of Duan, Lukin, Cirac and Zoller (DLCZ)¹, correlated pairs of photons and single photons have been produced from an atomic ensemble^{15–20}. Collective atomic qubits, atom–photon entanglement, and quantum state transfer from atomic to photonic qubits have also been demonstrated²¹. These initial experimental demonstrations within the DLCZ paradigm were beset by short atomic coherence times, of the order of the laser pulse length. In contrast, recent advances in atomic ensemble research²² allow for long quantum

memory times, in excess of ten microseconds in the present work, more than two orders of magnitude longer than the duration of the laser pulses involved in the protocols.

Here we report the synthesis of these two lines of research by demonstrating the generation, transmission, storage and retrieval of single photons using remote atomic ensembles as quantum memories. The essential ingredient that enables the completion of this synthesis, and which we report here, is the ability to convert single photons into single collective atomic excitations. In our experiment the remote quantum memories are based on cold atomic clouds of ⁸⁵Rb confined in magneto-optical traps (MOTs) at Sites A and B, as shown in Fig. 1. Sites A and B are physically located in adjacent laboratories, with a 100-metre-long single-mode optical fibre serving as the quantum information channel.

Our protocol begins with the generation of single photons at Site

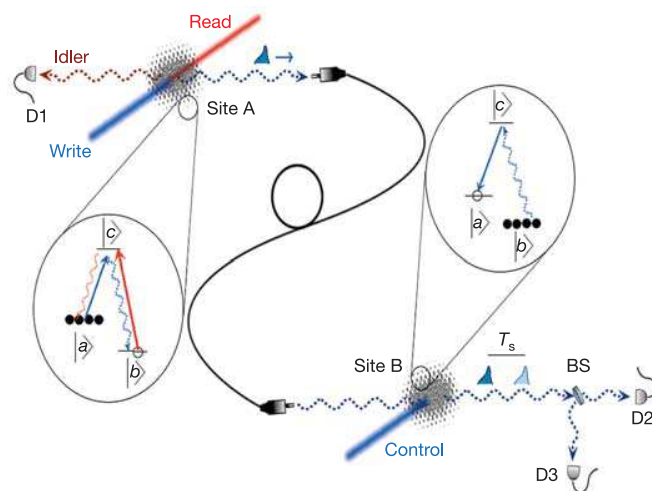


Figure 1 | A schematic diagram of our experimental set-up, demonstrating generation, transmission, storage and retrieval of single photon excitations of the electromagnetic field. Two atomic ensembles at Sites A and B are connected by a single-mode fibre. The insets show the structure and the initial populations of atomic levels for the two ensembles. All the light fields responsible for trapping and cooling, as well as the quadrupole magnetic fields in both MOTs, are shut off during the period of the protocol. The ambient magnetic field at each site is compensated by three pairs of Helmholtz coils (not shown). Correlated signal and idler fields are generated at Site A. The signal field is transmitted via optical fibre from Site A to Site B, where it is converted to atomic excitation, stored for a duration T_s , and subsequently retrieved. A Hanbury Brown-Twiss set-up consisting of a beamsplitter BS and two detectors D2 and D3, together with detector D1 for the idler field, are used to verify the single photon character of the retrieved field.

¹School of Physics, Georgia Institute of Technology, Atlanta, Georgia 30332, USA.

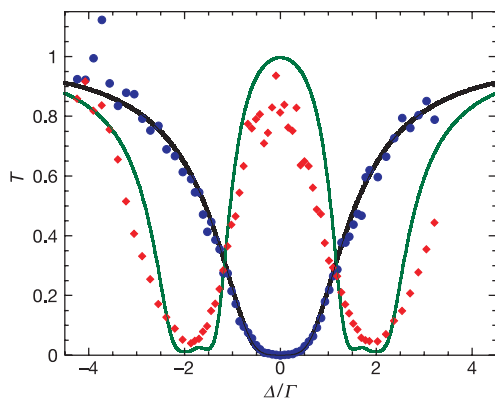


Figure 2 | Measured transmission spectra of a coherent probe field as a function of probe detuning in the presence of, and absence of, EIT. Data are taken using 700-ns-long coherent laser pulses. T is the intensity transmittance, Δ is the probe detuning and Γ is the decay rate of level $|c\rangle$. In the absence of control field (circles) the probe is strongly absorbed near resonance, whereas with the control field on (diamonds) the medium becomes transparent. Each probe pulse contains on average 0.3 photons. Each data point is an average of 2×10^5 experimental trials. The optical thickness $d = 8$ and the control field Rabi frequency $\Omega = 3\Gamma$ are used to obtain the solid curves, based on the theoretical model discussed in the Supplementary Information.

A, using an improved version of the DLCZ approach in the off-axis, counter-propagating geometry^{20,22}. The fibre channel directs the signal field to Site B where an optically thick atomic ensemble is prepared in level $|b\rangle$ (right inset in Fig. 1). The signal field propagation in the atomic medium is controlled by an additional laser field ('control') through the process of electromagnetically induced transparency (EIT)^{23,24}. As we deal with an unpolarized atomic ensemble, we must take into account the Zeeman degeneracy of the atomic levels. Choosing the same circular polarizations for both the probe and the control fields allows us to retain transparency, as discussed in more detail in the Supplementary Information. In Fig. 2 we show the EIT transmission spectrum recorded for a coherent laser probe field instead of the signal field. Evidently, in the absence of the control light the probe field is absorbed by the optically thick sample. With the addition of the c.w. control field, the medium is rendered transparent around the $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ transition resonance $\Delta = 0$.

The control field strongly modifies the group velocity of the signal field. For a time-dependent control field, a strong reduction of the group velocity of the propagating signal field can be understood in terms of a coupled matter–light field excitation known as a 'dark-state polariton'. By adiabatically switching off the control field, the coupled excitation can be converted into a pure atomic excitation, that is, the signal field is 'stopped'^{22,13,14}. An important condition to achieve storage is a sufficiently large optical thickness of the atomic sample, which enables strong spatial compression of the incident signal field⁹. In our experiment the measured optical thickness $d \approx 8$. Figure 3 compares our observations with the predictions of a theoretical model. Figure 3a compares the propagation of the signal pulse in vacuum and in the atomic medium under conditions of EIT with a c.w. control field. The observed pulse delay under conditions of EIT is about 20 ns, corresponding to more than three orders of magnitude reduction in group velocity. Figure 3b shows the effect of turning off the control-storage field when the signal pulse is approximately centred in the medium, and the subsequent retrieval of the signal field when the control-retrieval field is switched back on after a 500 ns storage time. Figure 3c shows retrieval after a storage time of 15 μ s. Qualitative agreement of the pulse shapes has been obtained in our theoretical analysis of the protocol using the full Zeeman structure of the atoms and a classical description of the signal field (Fig. 3d–f).

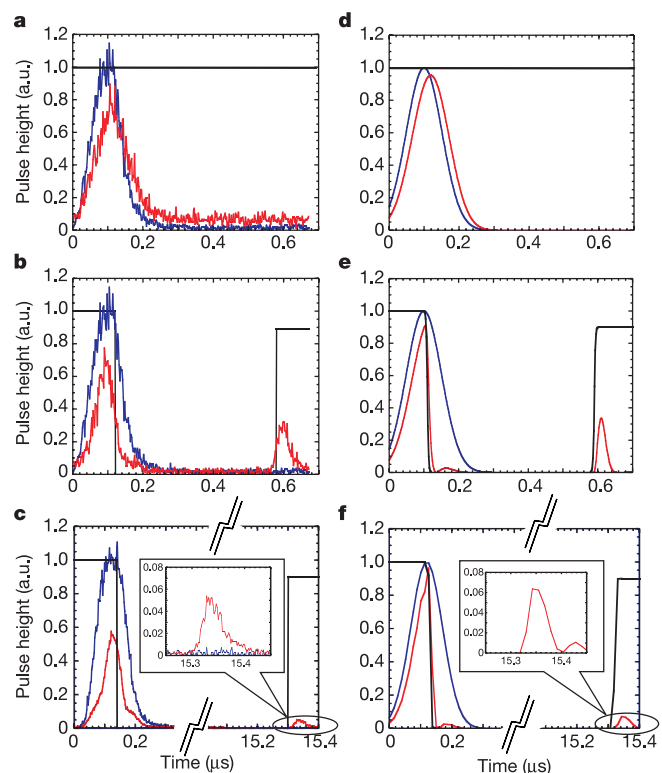


Figure 3 | Experimental and theoretical pulse shapes as a function of time, showing EIT, storage and retrieval. The colour code is: control field, black; pulse in vacuum, blue; delayed, stored and retrieved field, red. Panel **a** with a c.w. control field shows EIT pulse delay. In panel **b** the control field is switched off and then on again after 500 ns, and the panel shows light storage and retrieval. Panel **c** is similar to **b** but with a 15 μ s storage. Panels **d**, **e** and **f** are corresponding theoretical plots.

In order to verify the single-photon character of the signal field (1) without storage, and (2) with storage and retrieval, we use a Hanbury Brown–Twiss detection scheme, employing a beamsplitter followed by two single photon counters, as shown in Fig. 1²⁵. To provide such characterization, we note that classical fields must satisfy a criterion $\alpha \geq 1$ based on the Cauchy–Schwarz inequality^{25,26}. For an ideally prepared single photon state $\alpha \rightarrow 0$. Here the anticorrelation parameter α is a function of the storage time T_s , and is given by the ratio of various photoelectric detection probabilities which are measured by the set of detectors D1, D2 and D3 (see Methods):

$$\alpha(T_s) = \frac{p_1 p_{123}}{p_{12} p_{13}} \quad (1)$$

As an auxiliary measure of signal-idler field correlations, and as a way to quantify the quantum memory storage time, we also evaluate the normalized intensity cross-correlation function $g_{si} \equiv (p_{12} + p_{13})/[p_1(p_2 + p_3)]$ (ref. 27). In particular, it serves to estimate the total efficiency and background levels in the experiment, since g_{si} is, by definition, independent of efficiencies whereas p_1 is proportional to the overall idler channel efficiency.

First we measure g_{si} and α without storage at Site B (that is, with no atomic sample in place), and the results are displayed in Fig. 4a and b, respectively. Next we add an optically thick atomic sample at Site B, and perform storage of duration $T_s = 500$ ns and subsequent retrieval of the signal field, with results shown in Fig. 4c and d, respectively. No correction for background or dark counts were made to any of the experimental counting rates. The curve fits of g_{si} are based on a simple theoretical model, and allow us to obtain the efficiency in the idler channel and the background contributions to p_2 and p_3 for the stored signal field. These same values are used to

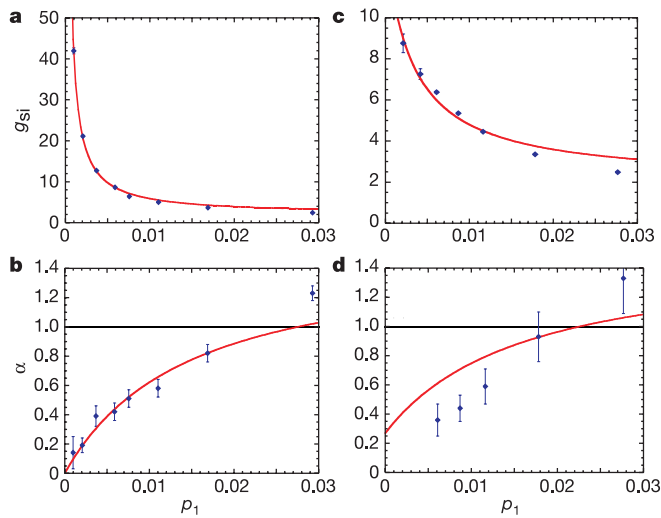


Figure 4 | Measured intensity cross-correlation function g_{si} and anticorrelation function α as a function of the idler photoelectric detection probability p_1 . Panels **a** and **b** are for the source (propagation in vacuum). Panels **c** and **d** are for stopped, stored for 500 ns, and retrieved signal field. The solid lines are based on a theoretical model that includes losses and background. Error bars represent $\pm$ one standard deviation, and are based on the statistics of the photoelectric counting events.

produce the corresponding theoretical curves in Fig. 4b and d. The measured values of $\alpha < 1$, displayed in Fig. 4b and d, confirm the single-photon character of both the source and retrieved signal fields (with the minimum values of $\alpha = 0.14 \pm 0.11$ and $\alpha = 0.36 \pm 0.11$, respectively). Overall, we estimate that the probability p_s for successful generation, transmission, storage, retrieval and detection of a signal photon is approximately $p_s \approx 10^{-5}$ for each trial. The efficiency of photon storage and retrieval E can be estimated as the ratio of the values of $p_2 + p_3$ with and without storage. We find $E \approx 0.06$, in agreement with the theoretical result shown in Fig. 3e.

To investigate the storage capability of our quantum memory at Site B, we measure g_{si} as a function of the storage time of the signal field T_s (Fig. 5). A Gaussian fit provides a time constant $\tau = 11 \mu\text{s}$, which is an estimate of our quantum memory time. The collapse is consistent with the Larmor precession of a dark-state polariton in an unpolarized atomic ensemble in a residual magnetic field. Experimentally we attempt to null the uniform, d.c. component of the magnetic field. A definitive way to distinguish whether the collapse is due to uniform or non-uniform and a.c. fields is to measure the damping time of the periodic revivals of the retrieved signal field at longer storage times. In a uniform magnetic field, undamped revivals of the dark-state polariton should occur at times equal to nT_L , where T_L is the Larmor period for level $|a\rangle$ or $|b\rangle$ and n can be either integer or half-integer, depending on the direction of the magnetic field relative to the light beam geometry (a synopsis of these ideas is given in the Supplementary Information, with the full theory presented in ref. 28). We have conducted separate experiments with an externally applied magnetic field²⁹, which suggest that the collapse in the present experiment is probably due to magnetic field gradients and/or a.c. fields at the level of a few tens of mG. However, more extensive investigations to quantitatively determine the temporal and spatial structure of the residual magnetic field, and the various contributions to it, are ongoing.

We have demonstrated generation, storage and retrieval of single quanta transmitted between two remote atomic ensembles serving as quantum memory elements. The control of the matter-field interface at the level of single quanta, and at remote sites, is encouraging for further developments and applications in quantum information science. In particular, the storage of a photonic qubit, with two

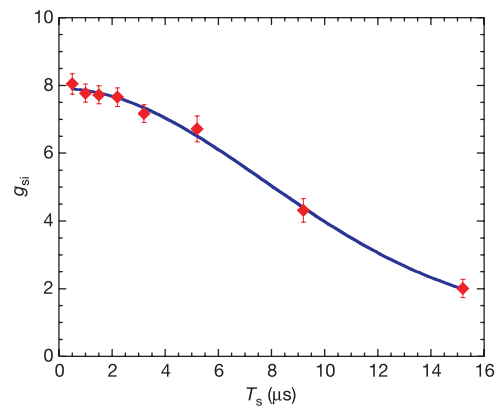


Figure 5 | Normalized signal-idler intensity correlation function g_{si} as a function of the storage time T_s at Site B. Data (diamonds) are taken for $p_1 = 0.0047$, but with a smaller background contribution than that of Fig. 4c and d. The full curve is a fit of the form $1 + B\exp(-t^2/\tau^2)$ with $B = 7$ and the collapse time $\tau = 11 \mu\text{s}$ as adjustable parameters. Error bars represent $\pm$ one standard deviation, and are based on the statistics of the photoelectric counting events.

logical states, would represent a crucial advance. In order to achieve this, the quantum memory at Site B would likewise need a second logical state, so as to realize a collective atomic qubit. Two different approaches for such qubits have already been demonstrated^{21,22}. If a second logical state were added to both quantum memories at Sites A and B, generation of remote entanglement of two atomic qubits would be possible.

METHODS

To generate single photons at Site A, we use the DLCZ approach in the off-axis, counter-propagating geometry introduced by Harris and co-workers²⁰. The insets in Fig. 1 indicate schematically the structure of the three atomic levels involved, $|a\rangle$, $|b\rangle$ and $|c\rangle$, where $\{|a\rangle; |b\rangle\}$ correspond to the $5S_{1/2}$, $F = \{3, 2\}$ levels of ^{85}Rb , and $|c\rangle$ represents the $\{5P_{1/2}, F = 3\}$ level associated with the D_1 line at 795 nm. The experimental sequence begins with an unpolarized sample of atoms prepared in level $|a\rangle$ (left inset of Fig. 1). A 160-ns-long write laser pulse tuned to the $|a\rangle \rightarrow |c\rangle$ transition is focused into the MOT with a gaussian waist of about 400 μm . The write pulse generates a cone of forward Raman-scattered signal field via the $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ transition. We collect a gaussian mode centred around the momentum $\mathbf{k}_s$ that forms an angle of about 2° with the write beam. The write pulse is so weak that on average less than one photon is scattered into the collected mode for each pulse. The signal field is coupled into the 100-m-long fibre connecting Sites A and B.

For each signal photon emission event, a correlated collective atomic excitation is created in the atomic ensemble. After a delay $\Delta t = 200 \text{ ns}$, a 140-ns-long counter-propagating read laser pulse resonant with the $|b\rangle \rightarrow |c\rangle$ transition illuminates the atomic ensemble and converts the atomic excitation into the idler field. Under the conditions of collective enhancement, the idler field is emitted with high probability into the mode determined by the phase-matching condition $\mathbf{k}_i = \mathbf{k}_w + \mathbf{k}_r - \mathbf{k}_s$, where $\mathbf{k}_i$, $\mathbf{k}_w$ and $\mathbf{k}_r$ are the wave vectors of the idler, write and read fields, respectively. The waist of the signal-idler mode in the MOT is about 150 μm . The idler field is directed onto a single photon counter D1. Ideally, photoelectric detection of the idler field projects the quantum state of the signal field into a single photon state. The repetition rate of the experiment is $2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$. Each data point in Fig. 4 involves an average over a time period that varied from several minutes up to 1.5 h for the data point with the lowest value of p_1 in d.

To measure the photoelectric detection probabilities $p_{12}, p_{23}, p_{13}, p_{123}$ and p_{123} , the outputs of the detectors are fed to three 'Stop' inputs of the time-interval analyser, which records the arrival times with a 2 ns time resolution. The electronic pulses from the detectors D1, D2, D3 are gated for periods $[t_0^i, t_0^i + T_g^i]$, with $T_g^1 = 140 \text{ ns}$, $T_g^2 = T_g^3 = 240 \text{ ns}$, respectively, centred on the times determined by the write and read (for no storage) or control-retrieval (for storage) laser pulses. Counts recorded outside the gating periods are therefore removed from the analysis. The list of recorded events allows us to determine the single-channel photoelectric event probabilities $p_i = N_i/M$, where

N_i is the total number of counts in the i th channel and M is the number of experimental trials (for D_i , $i = 1, 2, 3$). If photoelectric detections in different channels i , k , m happen within the same gating period, they contribute to the corresponding joint probabilities $p_{ij} = N_{ij}/M$, where N_{ij} is the total number of coincidences between D_i and D_j , where $i, j = 1, 2, 3$. The joint probability of all three detectors registering a count is given by $p_{123} = N_{123}/M$.

Received 23 August; accepted 13 October 2005.

1. Duan, L.-M., Lukin, M., Cirac, J. I. & Zoller, P. Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics. *Nature* **414**, 413–418 (2001).
2. Fleischhauer, M. & Lukin, M. D. Dark-state polaritons in electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5094–5097 (2000).
3. Ekert, A. K. Quantum cryptography based on Bell's theorem. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 661–663 (1991).
4. Bouwmeester, D. *et al.* Experimental quantum teleportation. *Nature* **390**, 575–579 (1997).
5. Boschi, D. *et al.* Experimental realization of teleporting an unknown pure quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels. *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1121–1125 (1998).
6. Briegel, H.-J., Duer, W., Cirac, J. I. & Zoller, P. Quantum repeaters: The role of imperfect local operations in quantum communication. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5932–5935 (1998).
7. Knill, E., Laflamme, R. & Milburn, G. J. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature* **409**, 46–52 (2001).
8. Raymer, M. G. & Walmsley, I. A. in *Progress in Optics* Vol. XXVIII (ed. Wolf, E.) 181–270 (North-Holland, Amsterdam, 1996).
9. Lukin, M. D. Colloquium: Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles. *Rev. Mod. Phys.* **75**, 457–472 (2003).
10. Kuzmich, A. & Kennedy, T. A. B. Non-symmetric entanglement of atomic ensembles. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 030407 (2004).
11. Julsgaard, B. *et al.* Experimental demonstration of quantum memory for light. *Nature* **432**, 482–486 (2004).
12. Hau, L. V., Harris, S. E., Dutton, Z. & Behroozi, C. H. Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas. *Nature* **397**, 594–598 (1999).
13. Phillips, D. F. *et al.* Storage of light in atomic vapor. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 783–786 (2001).
14. Liu, C., Dutton, Z., Behroozi, C. H. & Hau, L. V. Observation of coherent optical information storage in an atomic medium using halted light pulses. *Nature* **409**, 490–493 (2001).
15. Kuzmich, A. *et al.* Generation of nonclassical photon pairs for scalable quantum communication with atomic ensembles. *Nature* **423**, 731–734 (2003).
16. van der Wal, C. H. *et al.* Atomic memory for correlated photon states. *Science* **301**, 196–200 (2003).
17. Jiang, W. *et al.* Nonclassical photon pairs generated from a room-temperature atomic ensemble. *Phys. Rev. A* **69**, 043819 (2004).
18. Chou, C. W., Polyakov, S. V., Kuzmich, A. & Kimble, H. J. Single photon generation from stored excitation in an atomic ensemble. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 213601 (2004).
19. Eisaman, M. D. *et al.* Shaping quantum pulses of light via coherent atomic memory. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 233602 (2004).
20. Balic, V., Braje, D. A., Kolchin, P., Yin, G. Y. & Harris, S. E. Generation of paired photons with controllable waveforms. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 183601 (2005).
21. Matsukevich, D. N. & Kuzmich, A. Quantum state transfer between matter and light. *Science* **306**, 663–666 (2004).
22. Matsukevich, D. N. *et al.* Entanglement of a photon and a collective atomic excitation. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 040405 (2005).
23. Harris, S. E. Electromagnetically induced transparency. *Phys. Today* **50**, 36–42 (1997).
24. Scully, M. O. & Zubairy, M. S. *Quantum Optics* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1997).
25. Grangier, P., Roger, G. & Aspect, A. Experimental evidence for a photon anticorrelation effect on a beam splitter: A new light on single-photon interferences. *Europhys. Lett.* **1**, 173–179 (1986).
26. U'Ren, A. B. *et al.* Characterization of the non-classical nature of conditionally prepared single photons. *Phys. Rev. A* **72**, R021802 (2005).
27. Clauser, J. F. Experimental distinction between the quantum and classical field-theoretic predictions for the photoelectric effect. *Phys. Rev. D* **9**, 853–860 (1974).
28. Jenkins, S. D. *et al.* Theory of dark state polariton collapses and revivals. *Phys. Rev. A* (submitted); preprint at (<http://arXiv.org/quant-ph/0511017>) (2005).
29. Matsukevich, D. N. *et al.* Observation of dark state polariton collapses and revivals. *Phys. Rev. Lett.* (submitted); preprint at (<http://arXiv.org/quant-ph/0511015>) (2005).

Supplementary Information is linked to the online version of the paper at www.nature.com/nature.

Acknowledgements This work was supported by NASA, Office of Naval Research Young Investigator Program, National Science Foundation, Research Corporation, Alfred P. Sloan Foundation, and Cullen-Peck Chair. We thank M. S. Chapman for discussions and E. T. Neumann for experimental assistance.

Author Information Reprints and permissions information is available at npg.nature.com/reprintsandpermissions. The authors declare no competing financial interests. Correspondence and requests for materials should be addressed to A.K. (alex.kuzmich@physics.gatech.edu).

D Quantum Memory with a controlled homogeneous splitting

G. Hétet, D. Wilkowski, T. Chanelière. Quantum memory with a controlled homogeneous splitting. *arXiv/1208.0677* (2012) [Hétet2012].

Quantum Memory with a controlled homogeneous splitting

G. Hétet¹, D. Wilkowski^{2,3,4}, T. Chanelière⁵

¹ Institute for Experimental Physics, University of Innsbruck, A-6020 Innsbruck, Austria

² School of Physical and Mathematical Sciences, Nanyang Technological University, Singapore 637371, Singapore

³ Centre for Quantum Technologies, National University of Singapore, 117543 Singapore, Singapore

⁴ Institut Non Linéaire de Nice, Université de Nice Sophia-Antipolis, CNRS, F-06560 Valbonne, France

⁵ Laboratoire Aimé Cotton, CNRS UPR3321, Univ. Paris Sud, Bâtiment 505, Campus Universitaire, 91405 Orsay, France

Abstract. We propose a quantum memory protocol where a input light field can be stored onto and released from a single ground state atomic ensemble by controlling dynamically the strength of an external static and homogeneous field. The technique relies on the adiabatic following of a polaritonic excitation onto a state for which the forward collective radiative emission is forbidden. The resemblance with the archetypal Electromagnetically-Induced-Transparency (EIT) is only formal because no ground state coherence based slow-light propagation is considered here. As compared to the other grand category of protocols derived from the photon-echo technique, our approach only involves a homogeneous static field. We discuss two physical situations where the effect can be observed, and show that in the limit where the excited state lifetime is longer than the storage time, the protocols are perfectly efficient and noise-free. We compare the technique to other quantum memories, and propose atomic systems where the experiment can be realized.

PACS numbers: 42.50.Gy, 42.50.Nn, 42.50.Md, 03.67.Dd, 03.67.Hk

Atom-photon interfaces where photons are used as conveyers of information, and atoms are employed as stationary q-bits, are essential ingredients of quantum communication networks [1, 2]. Besides the fundamental interest, realizing a faithful writing and read out of quantum states of light from single or collections of atoms is important for applications such as quantum repeaters, which can ensure synchronization of local operations necessary for long distance quantum communication [3]. Various approaches are being pursued for achieving a controllable mapping between these two systems, depending on the wavelength of the light field to be stored or the material that is chosen for storage.

Efficient transfer of quantum information between atoms and photons requires controlled photon absorption with a very high probability, which can be achieved by using large atomic ensembles [4, 5]. Reversible mapping between a weak probe and a collective atomic dark state can be achieved by adiabatically controlling in time the intensity of a control field resonant with one branch of a Λ -scheme [6] using the Electromagnetically-induced-transparency (EIT) phenomenon. Off-resonant Raman excitation has been also successfully considered [7, 8, 9]. An alternative using a spectral hole burnt in an large inhomogeneous broadening has been proposed in the context of slow-light [10]. Another way to store quantum states of light is to employ a controlled and reversible inhomogeneous broadening (CRIB) [11]. Various such photon-echo type approaches were recently shown to be suitable quantum memories [12, 13, 14, 15]. Although these experiments improved rapidly over the past decades, quantum memories are still lacking long storage times, large delay-bandwidths and high efficiencies.

In this paper, we present a novel method for controllable storage of the quantum state of a light pulse in a homogeneous single ground state atomic ensemble via a time dependent external field. We coined this subset of quantum memories CHoS, for Controlled Homogeneous Splitting. The model is formally equivalent to EIT storage even if the slow-light propagation involves no ground state coherence or strong control fields. Here, the field state is directly mapped into optical coherences. Our approach hopefully offers a refreshing look at the concept of slow-light and extends the stopped-light experiments to a broader class of atomic systems.

We will discuss two physical situations where the CHoS can be achieved. The first memory uses the magnetically controlled dipole orientation in a V-scheme, using a $J = 0 \rightarrow J = 1$ transition for example. The second memory relies on the use of two subsets of atoms in the same medium for which one can control the detuning in an opposite fashion. This latter represents a common situation in Stark sensitive rare-earth doped materials when an homogeneous electric field is applied. In the weak coupling limit, the two branches of the V-scheme indeed are independent and can thus be treated as isolated two-level systems. In this case these two situations are formally equivalent. We first derive the expression of the adiabatic dark-state polariton and demonstrate the possibility to stop light in the medium when the Zeeman or Stark splitting is dynamically controlled. We then give different interpretations of the inhibited emission depending on the situation of interest. On one hand, the atomic spin polarization is rotated, and

on the other hand the radiation is canceled due to a destructive interference in the forward direction. The global features of the protocol are finally derived and supported by numerical simulations. Experiments are proposed as a conclusion.

1. Slow-light propagation

Our proposal follows the observation of slow-light propagation atomic ensembles and falls into a broader range of dispersive effects [16]. Steep dispersion is automatically obtained in a transparency window surrounded by two strong absorbing features, where the absorption and dispersion interplay is imposed by the Kramers-Kronig relations. We here consider a straightforward situation where a probe field is tuned between two absorbing homogeneous lines. A dynamical control of the line splitting is then required to go from slow to stopped-light. Such a situation corresponds to the two realistic situations shown in fig. 1, involving Zeeman and Stark control of the transitions respectively.

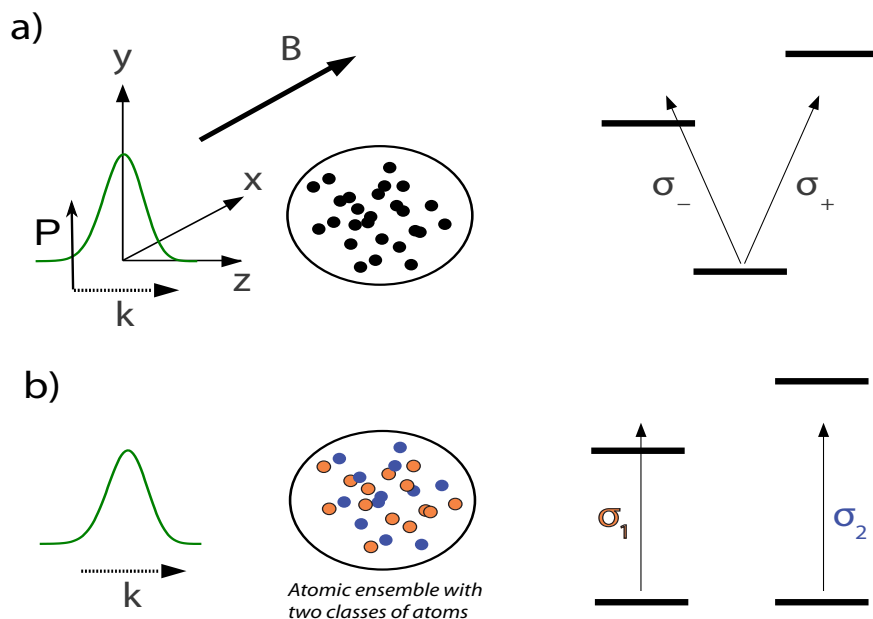


Figure 1. a) The probe field is tuned between two absorbing lines (z is the propagation axis). Top: $J = 0 \rightarrow J = 1$ transition interacts with the circularly polarized light with respect to magnetic field axis (x -axis). The incoming polarization is chosen along y -axis so the $|F = 0, m = 0\rangle\langle F = 1, m = 0|$ coupling is not allowed. b) A similar situation is obtained with two independent subsets of atoms (see section (4) for details). The splitting is controlled by a DC electric field (Stark effect). The common polarization orientation is here not predefined.

Our treatment and formalism are general but we will derive explicitly both examples in order to illustrate the protocol and the corresponding physical pictures.

1.1. Zeeman splitting case: $J = 0 \rightarrow J = 1$ under transverse magnetic field

For now, we will assume that the atoms are excited weakly enough such the atomic population stays mostly in the ground state $|F = 0\rangle$ throughout the interaction. The quantization axis is chosen along x (B -field). We introduce the Zeeman splitting $\Delta = g_L \mu_B B / \hbar$ (μ_B is the Bohr magneton, g_L the Lande factor).

To treat the propagation of the weak field into the ensemble we follow [6], and use slowly varying field envelope operators. In the circular basis, $\hat{\mathcal{E}}_y = (\hat{\mathcal{E}}_+ + \hat{\mathcal{E}}_-)/\sqrt{2}$ and $\hat{\mathcal{E}}_z = (\hat{\mathcal{E}}_+ - \hat{\mathcal{E}}_-)/\sqrt{2}i$ are the polarisation modes along z and y respectively. We treat the problem in one dimension, z being the only spatial variable, but implicitly consider atomic decay along all spatial modes in the Bloch equations.

We write $\hat{\sigma}_\pm^\dagger(z, t)$, the raising locally averaged atomic dipole operators from the ground state $|F = 0, m = 0\rangle$ to the excited states $|F = 1, m = \pm 1\rangle$, and $\hat{\sigma}_y = (\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-)/\sqrt{2}$, $\hat{\sigma}_z = (\hat{\sigma}_+ - \hat{\sigma}_-)/\sqrt{2}i$. We then write the atomic coupling strength to the two x and z probe modes as g . In the weak probe limit, we can neglect the excited-state populations and coherences, and solving the Heisenberg equation yields $i\partial\hat{X}/\partial t = M(t)\hat{X} + \hat{\mathcal{F}}$ where

$$M = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & -g\sqrt{2N} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & g\sqrt{2N} \\ 0 & 0 & \Gamma & 0 & i\Delta \\ -g\sqrt{2N} & 0 & 0 & \Gamma & 0 \\ 0 & g\sqrt{2N} & -i\Delta & 0 & \Gamma \end{bmatrix}. \quad (1)$$

$\hat{X} = \{\hat{\mathcal{E}}_x(k, t), \hat{\mathcal{E}}_y(k, t), \hat{\sigma}_z, \hat{\sigma}_x, \hat{\sigma}_y\}$ and $\hat{\mathcal{F}}$ are delta-correlated noise terms that appear due to the fluctuation-dissipation theorem. The term $\Gamma = -i\gamma/2$ describes the spontaneous emission from the optical coherences. The probe detuning with respect to the central level is set to zero so Γ has no real part.

The equations of motion describing the interaction of the transverse polarization field $\hat{\mathcal{E}}_y$ with the coherences $\hat{\sigma}_y$ and $\hat{\sigma}_z$ may be derived from (1) by considering the spatial k -vector of the probe field (by simply writing $\Gamma = |k|c - i\gamma/2$) and Fourier transforming the optical field equation to the z -space. They read

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial t} + c\frac{\partial}{\partial z}\right) \hat{\mathcal{E}}_y(z, t) &= -ig\sqrt{2N}\hat{\sigma}_y(z, t) \\ \frac{\partial}{\partial t} \hat{\sigma}_z(z, t) &= -\frac{\gamma}{2}\hat{\sigma}_z(z, t) + \Delta\hat{\sigma}_y(z, t) \\ \frac{\partial}{\partial t} \hat{\sigma}_y(z, t) &= -ig\sqrt{2N}\hat{\mathcal{E}}_y(z, t) - \Delta\hat{\sigma}_z(z, t) - \frac{\gamma}{2}\hat{\sigma}_y(z, t) \end{aligned} \quad (2)$$

We now derive the formally equivalent equations of motion in the Stark splitting case.

1.2. Stark splitting case: two subsets of atoms with opposite detunings

We now consider two classes of atoms described by the coherence $\hat{\sigma}_{1,2}(z, t)$, which are located within a δz -thin slice of area $\mathcal{A}$ and write

$$\hat{\sigma}_{1,2}(z, t) = \frac{1}{n\mathcal{A}\delta z} \sum_{z_k \in \delta z} \hat{\sigma}_{1,2}^k(z, t), \quad (3)$$

The angular momentum operators of each class commute. We here assume that the transitions have opposite Stark shifts $-\Delta$ and Δ respectively. The system is governed by the same Bloch-Maxwell equations that we previously derived. It can be alternatively derived from the semi-classical formalism [17]:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial t} + c \frac{\partial}{\partial z} \right) \hat{\mathcal{E}}_y(z, t) &= -ig\sqrt{N} (\hat{\sigma}_1(z, t) + \hat{\sigma}_2(z, t)) \\ \frac{\partial}{\partial t} \hat{\sigma}_1(z, t) &= -\left(\frac{\gamma}{2} + i\Delta \right) \hat{\sigma}_1(z, t) - ig\sqrt{N} \hat{\mathcal{E}}_y(z, t) \\ \frac{\partial}{\partial t} \hat{\sigma}_2(z, t) &= -\left(\frac{\gamma}{2} - i\Delta \right) \hat{\sigma}_2(z, t) - ig\sqrt{N} \hat{\mathcal{E}}_y(z, t) \end{aligned} \quad (4)$$

The analogy with the system of equations (1) is complete by writing $\hat{\sigma}_y = (\hat{\sigma}_2 + \hat{\sigma}_1)/\sqrt{2}$, $\hat{\sigma}_z = (\hat{\sigma}_2 - \hat{\sigma}_1)/\sqrt{2}i$.

1.3. Light propagation

For both systems, the propagation is derived from the analysis of the susceptibility that we define for the probe field mode y as $\partial \tilde{\mathcal{E}}_y(z, \omega)/\partial z = \chi_y(\omega) \tilde{\mathcal{E}}_y(z, \omega) + \text{noise}$ where $\tilde{\mathcal{E}}_y$ is the temporal Fourier transform of the probe. It reads

$$\chi_y(\omega) = -i\frac{\omega}{c} - \frac{\alpha}{2} \frac{(\gamma + i\omega)\gamma}{(\gamma + i\omega)^2 + \Delta^2}. \quad (5)$$

similar to the EIT susceptibility [6, 18] with Δ replacing the control field in the Λ -scheme. $\alpha = 4g^2N/\gamma c$ is the resonant absorption coefficient defining the optical depth of the medium $b = \alpha L$ (where L is the length of the medium). The real part of the susceptibility as a function of the probe frequency features two transmission peaks that are well separated in the limit $\Delta \gg \gamma$. The group velocity v_g can now read as

$$\frac{1}{v_g} = \frac{1}{c} + \frac{\alpha\gamma}{\Delta^2}. \quad (6)$$

A net slow-propagation can be observed as soon as the off-resonance absorption is negligible. The transparency condition reads as

$$\frac{b\gamma^2}{\Delta^2} \ll 1, \quad (7)$$

The similarities with EIT will be even more flagrant by showing that stopped-light can be obtained by CHoS.

2. CHoS dark-state polariton

2.1. Stopped light

Here we show that there a dark-state polariton exists [6] and stopped-light can be achieved. The expression for the polariton $\hat{\Psi}$ is found by diagonalizing the matrix M of Eq. 1. Assuming that the probe varies smoothly in the sample so that $|k|$ is small and neglecting spontaneous decay yields the zero-eigenvalue (adiabatic/Dark) eigenvector

$$\hat{\Psi}(t) = \cos \theta(t) \hat{\mathcal{E}}_y + \sin \theta(t) \hat{\sigma}_z. \quad (8)$$

The mixing angle θ is defined as $\tan \theta = \frac{\alpha \gamma c}{\Delta}$ where $\theta(t)$ is now time-dependent. Dominated by the light field, the polariton is converted into its atomic part $\hat{\sigma}_z$ when the splitting $\Delta(t)$ is reduced to zero. After the adiabatic following, the incoming state of light is mapped into the atomic medium. In the transparency condition, we indeed find that the group velocity is

$$v_g = c \cos^2 \theta. \quad (9)$$

The formal analogy with EIT-storage is nevertheless not fully satisfying. First, the analogy is only explicit when the Autler-Townes doublet is considered in the regime of large coupling field [19, 6]. In this later case, the excited state is split by the AC-Stark effect and two separate absorption lines are observed. That is the situation we achieve with a DC-Stark or Zeeman shift. Second, in the EIT case, the storage relies on the conversion of the field into the Raman coherence. In our case, no ground state coherence is involved. The equivalent of the EIT Raman coherence is here the superposition $\hat{\sigma}_z$ of the two optical coherences. The canceling of the emission therefore must rely on a different physical mechanism. In the next section we give the explanation why the splitting can dynamically control emission in the probe mode.

2.2. Storage interpretation

There are in fact two different reasons why the coupling to the probe mode can be canceled for the V-scheme and for the situation where two classes of atoms are considered. We explicitly separate the two cases here.

2.2.1. Zeeman splitting or V-scheme At first sight, it seems surprising that the field polarization along y -axis is transferred to an atomic dipole along the z -axis, as suggested by Eq. (8). However, in the V-scheme considered here, the linear field polarization is decomposed into two circular polarization with opposite handedness. Each of those is then coupled to an excited state with opposite frequency detuning (see fig. 1a). At large Zeeman splitting, the phase shift difference due to the resonance therefore tends to π , leading to a macroscopic dipole orientation locked along z -axis. In this situation the medium is almost transparent and has a linear dispersion curve around the midpoint of the resonance profile. Once the magnetic field is switched off, the medium becomes opaque and the field coherence is stored in the atomic excitation. This transient

effect should not be confused with the stationary regime of an on-resonance excitation (opaque) polarized along y -axis. There, the atomic dipole would be oriented along y -axis. In the protocol discussed here, the time scale is much faster than the inverse of the linewidth thus preventing a dipole reorientation. In other words, the stationary regime cannot be reached and the dipole stays along the z -axis. The release of the electromagnetic pulse is then performed again by simply switching on the magnetic field to its original value.

2.3. Stark splitting case

When two subsets of Stark detuned atoms are considered, the interpretation in terms of the previously mentioned rotated dipole emission is not appropriate anymore. Concerning the Stark shifted transition, no assumption regarding the dipole polarization was done. They are equally excited without any predefined orientation. What remains nonetheless is the destructive interference in the forward spatial mode. Tuning the splitting to zero essentially rotates the phase of the collective state so that the two classes of each atomic wavelet within one slice interferes with a relative π phase shift.

If we consider only the probe mode and neglect the spontaneous decay in the other directions, the collective directed emission is altered in a very similar way than in the case of super-radiance. Here the difference operator σ_z and the sum operator σ_y would mean sub- or super- radiant emission respectively and the splitting dynamically switches between the two regimes.

3. Storage performance

Before presenting the storage simulations showing the performances of our protocol, we estimate the bandwidth and efficiency of the memory.

3.1. Global scaling of the storage bandwidth and efficiency

This estimation has been done in the case of EIT [20] based on delay-bandwidth consideration. We simply rederive it. It has the advantage to fix the dependency between the parameters: the splitting Δ , the transition width γ and the optical depth b . For a given optical depth, the bandwidth should be chosen to optimize the group delay [20]. In other words, a large bandwidth requires a large splitting at the expense of a low group velocity. A trade-off should be found. On the one hand, the group delay in the slow-light limit reads as (eq. 6)

$$T_g = \frac{b\gamma}{\Delta^2} \quad (10)$$

On the other hand, for a given optical depth, the bandwidth is not systematically given by Δ because the transparency condition (7) applies. This latter tells us that the splitting Δ should be larger than $\gamma\sqrt{b}$. When the transmission (exponential of the real

part susceptibility) is plotted, $\gamma\sqrt{b}$ is the actual width of the absorption peaks. The minimum splitting is then bounded by this value

$$\Delta \sim \gamma\sqrt{b}$$

imposing the condition on the bandwidth $1/\tau$ (τ is the temporal duration of the incoming pulse).

$$\frac{1}{\tau} \sim \gamma\sqrt{b} \quad (11)$$

This estimation of the delay-bandwidth allows a rough estimation of the storage efficiency. Due to slow-light preparation, the pulse is spatially compressed by a factor c/v_g . The fraction of the incoming pulse actually contained in the medium is roughly given by T_g/τ . This estimation gives the efficiency η scaling at low optical depth.

$$\eta \sim \frac{T_g}{\tau} \sim \sqrt{b} \quad (12)$$

Similar scaling analysis has been derived for the other storage protocols based on a steep dispersion profile. The latter may be produced by a transparency window in Λ -scheme [20], a spectral hole burnt in an inhomogeneous profile [10] or steep dispersive feature due to Raman absorption [9]. Different scalings are expected depending on the nature of the dispersion profile (level structure and atom dynamics) but they all derive from a delay-bandwidth trade-off.

3.2. Comparison with numerical simulations

To derive a more quantitative analysis especially at large optical depth for which a good efficiency is expected, we plotted in fig. 2-a) the result of numerical simulations where a weak input field is applied to an ensemble of atoms with optical depth b . The pulse has a Gaussian shape with width of $\sigma_\tau = 0.002/\gamma$.

We solve the coupled Maxwell-Bloch equations including decay and probe propagation on a space-time grid for a storage time of $0.013/\gamma$. The Langevin terms associated with spontaneous emission is not included since the atoms stay mostly in the ground state throughout the whole storage process, no noise can be added to the output field beyond that which ensures its commutation relations [21, 22]. Furthermore, in the weak probe limit, the atoms may be described as harmonic oscillators so that we can treat the light-atom operators as c-numbers in the simulations.

Without turning off the homogeneous splitting, trace (i) shows a delayed output of the ensemble with a delay of $3\sigma_\tau$, when using a splitting of 3600γ and an optical depth of 6.10^4 . This feature is highly demanding for an atomic sample. Nevertheless because no ground state coherence is required, we hope our proposal will stimulate the development of new materials and/or the investigation of existing media in different experimental conditions. Trace (ii) shows simulations with a reduced splitting of 2000γ . A larger delay is achieved but significant distortion occurs as part of the pulse spectrum lies outside the linearly dispersive region. In our scheme, a very high optical depth is

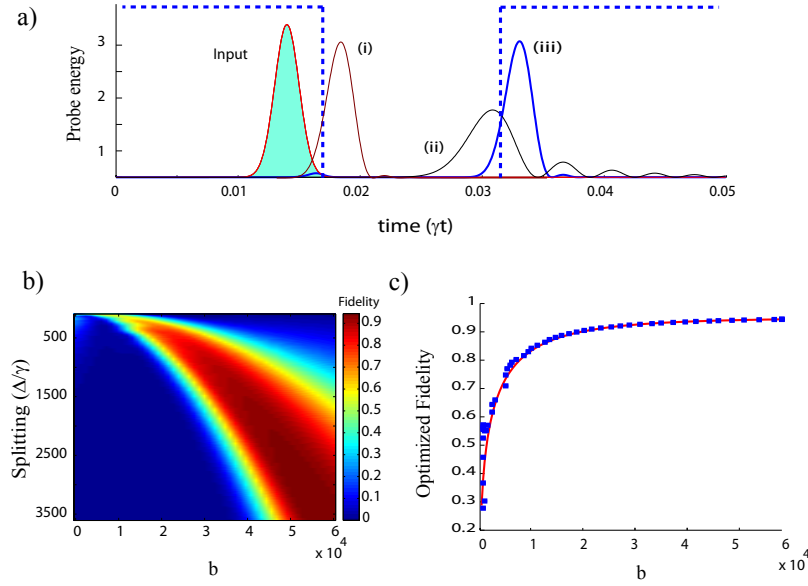


Figure 2. a) One dimensional Maxwell-Bloch equations simulations showing the temporal evolution of the probe intensity when the splitting is kept constant with $\Delta = 3600\gamma$ and $\Delta = 2000\gamma$ for traces (i) and (ii) respectively. When the splitting is dynamically controlled and initially at $\Delta = 3600\gamma$ (the dashed line shows the level splitting in a.u. units), the pulse is stored and retrieved efficiently (trace (iii)). b) Simulations of the evolution of the fidelity (see text for the definition) as a function of the optical depth b and normalized splitting Δ/γ . c) Optimized single mode fidelity as a function of optical depth.

required in order to achieve a large delay. In order to reduce spontaneous emission, the splitting indeed has to be large enough, which lowers the group velocity, as previously discussed.

We now show that one can in fact increase the delay also by dynamical control of the transverse B field intensity or Stark shift and with no distortion of the pulse shape. Trace (iii) shows the output of the memory when the splitting is switched off at time $0.017/\gamma$ and on at $0.03/\gamma$. The output shape is here well preserved with a significant delay. As in [6], full transfer to the dark-state thus increases the delay-bandwidth that one could reach using delay only, and allows the form-stable propagation of an admixture of light and atomic coherence at a time dependent group velocity given by Eq. 9.

We now consider the dependence of storage efficacy as function of optical depth. To account for distortions, we calculate a single mode efficiency, which we call fidelity. It is defined as

$$\mathcal{F} = \frac{1}{N_{ph}} \int_{t_1}^{t_2} dt \langle \hat{\mathcal{E}}_{out}^\dagger(t - \tau) \hat{\mathcal{E}}_{in}(t) \rangle, \quad (13)$$

where $N_{ph} = \int_{t_1}^{t_2} dt \langle \hat{\mathcal{E}}_{in}^\dagger(t) \hat{\mathcal{E}}_{in}(t) \rangle$. The temporal mode that we use to define our detection basis is thus the input mode profile.

Fig. 2-b) shows the dependency of the fidelity on optical depth and splitting with

a given pulse width and storage time. The simulations show that high fidelity can be obtained only at large splitting and very large optical depths. For low splitting values, the highest fidelity is much below 1. This is because of a strong distortion of the pulse, for which the frequency components lie outside the linearly dispersive domain. It therefore cannot be recalled efficiently in the right output temporal mode. At higher values of the splitting, the highest efficiency increases, but higher optical depths are required. This is because the large group delay required to fit the pulse in the medium is now higher.

To find out the most favorable regime for a given input pulse, we now search for the bandwidth that maximizes the fidelity at a given optical depth. The results are shown fig. 2-c). The points are the results of numerical simulations. The optimum fidelity shows a rapid increase as a function of optical depth. The red line shows analytical results using $\exp(-\gamma t_s/2)(1 - \exp(\sqrt{d}/2))$ as a function, where t_s is the storage time. Very good agreement is found consistent with the previous scaling predicted in sec. 3.1 in the low optical depth limit.

Similar scaling analysis were derived for EIT in [22]. Following the same idea, as proposed by Gorshkov *et al.*, an optimized temporal shape of the control field significantly enhanced the storage efficiency. Even if it is not the goal of the present paper, it is also a possibility in our case by temporal shaping of the splitting evolution $\Delta(t)$.

We showed here that, provided the storage time is lower than the atomic decay time, the memory can thus operate optimally at high optical depth. The decay will eventually limit the storage time but does not impact the capacity or efficiency of the memory. The latter only depends on the resonant optical depth [22, 23] which, for a homogeneous atomic ensemble, depends on the number of atoms and the scattering cross-section. Provided one can switch the magnetic or Stark shift fast, high delay-bandwidths and efficiencies can be reached. To obtain even better efficiencies if the optical depth is limited, one can mitigate coupling to another long-lived state with a detuned laser field. One could also use only a simple Λ -scheme, with an off-resonant bi-chromatic coupling field in order to create two narrow spectral lines within the probe transmission profiles. The transfer to the metastable coherence can be complete by controlling in time the frequency difference between the two components of the bi-chromatic Raman laser beam. This essentially gives similar physics then in our proposed optical coherence storage and may complement the Raman storage protocols that were proposed with only one frequency component [9].

Let us note here that in the V-scheme storage, a longitudinal (along z) magnetic field would induce Faraday rotation of the probe polarization during the pulse propagation. It severely complicates the pulse propagation dynamics. However further simulations suggest that this condition becomes less drastic when storage is implemented and that the longitudinal magnetic field can in fact still be left on. We can note also that a residual magnetic component along the polarization y -axis would introduce extra absorption, which may be a stringent issue at large optical depth.

4. Experimental proposals

The storage time of CHoS memories is limited by the lifetime $\gamma/2$ of the optical coherences. Appropriate systems should present a sufficiently long coherence time to enable switching of the magnetic or electric field required to trigger the storage. We here focus on narrow transition in gas or in solids. Slow-light propagation have been already observed in theses systems precisely exploiting the steep dispersion produced by neighboring absorption feature [24, 25, 26].

4.1. V-scheme on narrow atomic lines

As an illustrative example on gaseous system with a natural $J = 0 \rightarrow J = 1$ transition, we consider a cold atomic sample of strontium. The intercombination line is long-lived ($\gamma/2 \simeq 2\pi \times 7.5\text{kHz}$) and was already used to show efficient and time resolved free induction decay [27], a first steps towards coherent control of the collective dipole radiation with a homogeneous magnetic field. Taking some experimentally achievable quantities $\alpha = 2 \times 10^6 \text{m}^{-1}$, $\Delta = 23\gamma$ corresponding to a reasonable field of $0.2 G$ and a sample size of $L = 100 \mu\text{m}$, one gets $v_g \simeq 100 \text{m/s}^{-1}$ and a pulse duration $\tau \simeq 1 \mu\text{s}$. The transfer fidelity is expect to be around 20% for $b \simeq 200$.

As previously discussed, inhomogeneous magnetic fields along z should not impact the writing and reading efficiency. This should also be true for any inhomogeneous longitudinal broadening, so the method would essentially be Doppler-free. Only inhomogeneity of the B-field along the transverse mode will impact the storage efficiency resulting in a imperfect extinction of the coupling constant in the probe mode.

4.2. Stark splitting with rare-earth dopants

This memory proposal will here find direct use in rare-earth doped materials. The situation where two subsets of ions exhibit opposite Stark shifts is surprisingly common in practice. Indeed, when rare-earth ions occupy a local non-centrosymmetric substitution site embeded in matrix with overall central symmetry, the inversion operator requires the existence of opposite Stark shifts for different ions [28]. Also known as pseudo-Stark splitting, this situation has been particularly helpfull to study the surrounding of luminescent emitters in insulators [29]. Many oxyde crystals satisfy this condition [30].

Rare-earth crystals are also known for their extremely narrow resonances at low temperature [31]. Combined with a large absorption coefficient, slow-light propagation has been observed in a transparency window generated by spectral hole-burning [26]. The Stark control of the group velocity is placed in this lineage and seems to be directly accessible experimentally. The possibility offered by DC electric field has been considered in a modified and particularly successful version of the photon-echo technique [32] and has been used to inhibit and trigger the emission of a rare-earth ensemble [33].

Praseodymium-doped Y_2SiO_5 is well suited for our application because it exhibits a pseudo-Stark splitting. Extremely narrow absorbing peaks can be accurately prepared. Hedges et al. [32] have indeed shown that 140 dB attenuation feature can be rapidly controlled by Stark fields with a possible effective $\gamma/2 \simeq 2\pi \times 12\text{kHz}$. It corresponds to an optical depth $b \simeq 32$ sufficient for a proof-of-principle demonstration. Highly doped or even stoichiometric rare-earth doped sample can be considered to obtain a larger optical depth. As compared to EIT storage in atomic vapors where four-wave mixing, absorption of the control beam and collisions were pointed out as limitations at large optical depth [34], our protocol combined with the specificities of rare-earth crystals may present optimized storage performances.

5. Conclusion

In conclusion, we propose a quantum memory protocol where either control over the three-dimensional angular distribution of the macroscopic dipole emission or the tuning of the phase difference between the atom and the field in a given mode is used. Although the physics of our storage process relies on time-encoding of the information onto dark-state and slow-light effects, it significantly differs in essence from the EIT and Raman processes because no ground state coherence is necessary. Numerical and analytical analysis shows that the method is ideally efficient and allows large delay-bandwidth to be reached.

We here considered an optical thick ensemble, but the technique can be implemented as well with single atoms in high-finesse optical cavities. Changing the transverse magnetic field would effectively tune the strength of the Purcell effect that takes place along the cavity mode, thereby also offering a realistic prospect for single atoms quantum memories [35] without strong control fields. We note that a theoretical idea was also recently put forward to store light by controlling the coupling constant of rare-earth ions [36] and that switching the direction of magnetic field of hyperfine levels was also investigated in the context of nuclear resonant forward scattering of X-rays in [37]. We anticipate that the simplicity of our idea will open a new direction for research on atom-light interfaces in a broader range of atomic systems.

Acknowledgments

G.H would like to acknowledge useful discussions with H. Zoubi and M. Hennrich as well as financial support from a Marie Curie Intra-European Action of the European Union, the FP7 QuRep project, and by the french national grant ANR-09-BLAN-0333-03. The research leading to these results has received funding from the People Programme (Marie Curie Actions) of the European Union's Seventh Framework Programme FP7/2007-2013/ under REA grant agreement no. 287252. We thank the National University of Singapore CQT for supporting the visit of G.H. and T.C.

References

- [1] Cirac J I et al. 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 3221–3224
- [2] Duan L M et al. 2001 *Nature* **414** 413–418
- [3] Briegel H J, Dür W, Cirac J I and Zoller P 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 5932–5935
- [4] Julsgaard B et al. 2004 *Nature* **432** 482–486
- [5] Phillips D F et al. 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 783–786
- [6] Fleischhauer M and Lukin M D 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84**(22) 5094–5097
- [7] Kozhekin A E, Mølmer K and Polzik E 2000 *Phys. Rev. A* **62**(3) 033809
- [8] Dantan A and Pinard M 2004 *Phys. Rev. A* **69**(4) 043810
- [9] Nunn J, Walmsley I A, Raymer M G, Surmacz K, Waldermann F C, Wang Z and Jaksch D 2007 *Phys. Rev. A* **75**(1) 011401
- [10] Lauro R, Chanelière T and Le Gouët J L 2009 *Phys. Rev. A* **79**(5) 053801
- [11] Moiseev S A and Kröll S 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 173601
- [12] Saglamyurek E, Sinclair N, Jin J, Slater J A, Oblak D, Bussières F, George M, Ricken R, Sohler W and Tittel W 2011 *Nature* **469** 512–515
- [13] Clausen C, Usmani I, Bussières F, Sangouard N, Afzelius M, de Riedmatten H and Gisin N 2011 *Nature* **469** 508–511
- [14] Hosseini M, Campbell G, Sparkes B M, Lam P K and Buchler B C 2011 *Nat Phys* **7** 794–798
- [15] Hedges M P, Longdell J J, Li Y and Sellars M J 2010 *Nature* **465** 1052–1056
- [16] Boyd R W and Gauthier D J 2002 Chapter 6 slow and fast light (*Progress in Optics* vol 43) ed Wolf E (Elsevier) pp 497 – 530
- [17] Allen L and Eberly J 1987 *Optical resonance and two-level atoms* (Courier Dover Publications)
- [18] Boller K J, Imamolu A and Harris S E 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66**(20) 2593–2596
- [19] Autler S H and Townes C H 1955 *Phys. Rev.* **100**(2) 703–722
- [20] Lukin M D 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75**(2) 457–472
- [21] Hétet G, Peng A, Johnsson M T, Hope J J and Lam P K 2008 *Phys. Rev. A* **77**(1) 012323
- [22] Gorshkov A V, André A, Lukin M D and Sørensen A S 2007 *Phys. Rev. A* **76**(3) 033805
- [23] Nunn J, Reim K, Lee K C, Lorenz V O, Sussman B J, Walmsley I A and Jaksch D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101**(26) 260502
- [24] Camacho R M, Pack M V and Howell J C 2006 *Phys. Rev. A* **73**(6) 063812
- [25] Siddons P, Bell N C, Cai Y, Adams C S and Hughes I G 2009 *Nat Photon* **3** 225–229 ISSN 1749-4885
- [26] Lauro R, Chanelière T and Le Gouët J L 2009 *Phys. Rev. A* **79**(6) 063844
- [27] Chalony M, Pierrat R, Delande D and Wilkowski D 2011 *Phys. Rev. A* **84**(1) 011401
- [28] Macfarlane R M 2007 *Journal of Luminescence* **125** 156 – 174
- [29] Kaplyanskii A 2002 *Journal of Luminescence* **100** 21 – 34 ISSN 0022-2313
- [30] Graf F R, Renn A, Wild U P and Mitsunaga M 1997 *Phys. Rev. B* **55**(17) 11225–11229
- [31] Liu G and Jacquier B 2005 *Spectroscopic properties of rare earths in optical materials* (Springer Verlag)
- [32] Hedges M P, Longdell J J, Li Y and Sellars M J 2010 *Nature* **465** 1052–1056 ISSN 0028-0836
- [33] McAuslan D L, Ledingham P M, Naylor W R, Beavan S E, Hedges M P, Sellars M J and Longdell J J 2011 *Phys. Rev. A* **84**(2) 022309
- [34] Phillips N B, Gorshkov A V and Novikova I 2008 *Phys. Rev. A* **78**(2) 023801
- [35] Specht H P, Nolleke C, Reiserer A, Uphoff M, Figueroa E, Ritter S and Rempe G 2011 *Nature* **473** 190–193
- [36] Green A, Han Y, Heshami K, Rispe A, Saglamyurek E, Sinclair N, Tittel W and Simon C 2011 *ArXiv e-prints* (*Preprint* 1106.3513)
- [37] Shvyd'ko Y V 1999 *Phys. Rev. B* **59**(14) 9132–9143

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

J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, C. Simon, T. Chanelière. Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol. *Phys. Rev. A*, 79(5), 053851 (2009) [Ruggiero2009].

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](https://doi.org/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

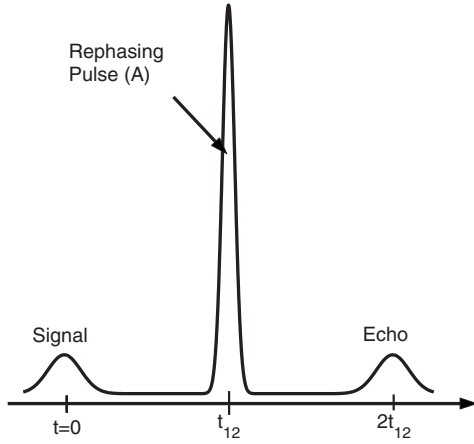


FIG. 1. Outline of the time sequence. The signal is first absorbed in the medium. After a time t_{12} a rephasing pulse of large area A induces a buildup of the coherence at the time $2t_{12}$ and gives rise to the photon echo. We address the problem in the weak signal and the echo regime, which shall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

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

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

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

$$\partial_t w(\omega_{ab}; z, t) = \Omega(z, t) v(\omega_{ab}; z, t), \quad (1)$$

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:

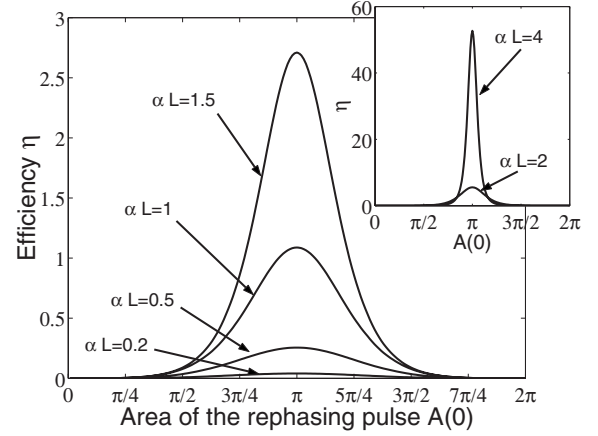


FIG. 2. Efficiency of the 2PE as a function of the rephasing pulse area $A(0)$ for different optical thickness αL . Inset: for larger αL , the efficiency is much larger than unity at the maximum rephasing.

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

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:

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

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

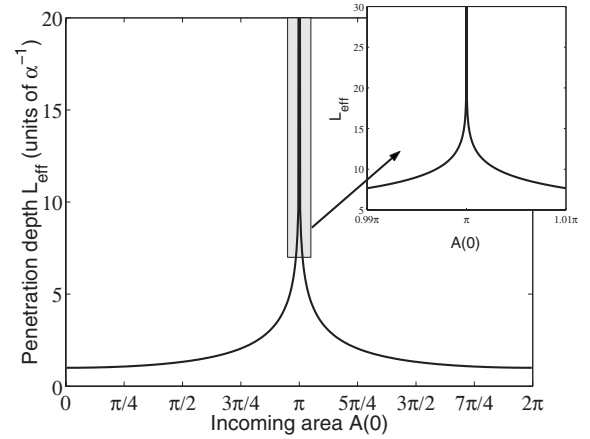


FIG. 3. Penetration depth L_P of a strong pulse in unit of α^{-1} as a function of the incoming area. Inset: penetration of pulses with area of π plus or minus 1%. For small-area pulses, it is simply given by an absorption law $L_P = \alpha^{-1}$.

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:

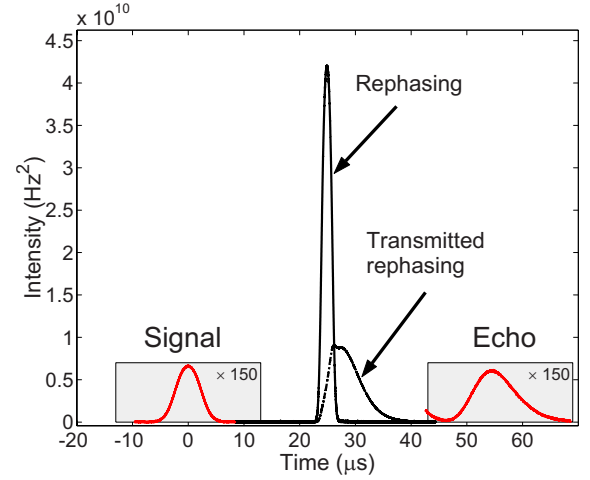


FIG. 4. (Color online) Time sequence for 1.1π -rephasing pulse. With the signal and the echo being very weak, we magnify their scale by a factor of 150 (solid red line). The intensity is given as the square of the Rabi frequency. The signal and the rephasing pulse have a duration of 2.1 and 0.8 μs , 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).

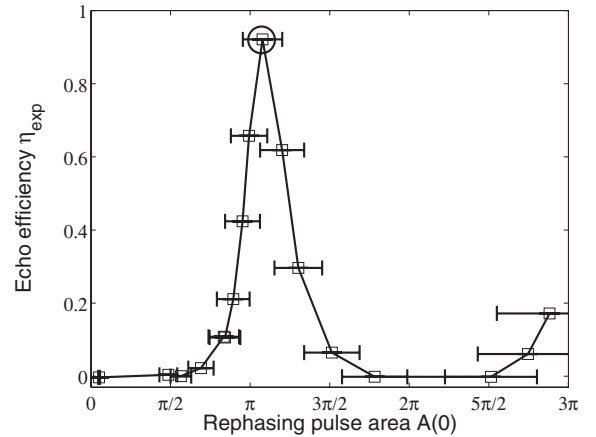


FIG. 5. Efficiency of the echo retrieval as a function of the rephasing pulse area $A(0)$. The maximum (circle) is obtained for $A(0) = 1.1\pi$, where the efficiency is 92%. This corresponds to the situation depicted in Fig. 4.

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 equivalent.

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

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

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

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 is 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. Lorgeté, and J.-L. Le Gouët, *Opt. Commun.* **241**, 203 (2004).
- [24] M. Tian, F. Grelet, I. Lorgeté, 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. Lorgeté, *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).

F Revival of silenced echo and quantum memory for light

V. Damon, M. Bonarota, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët. Revival of silenced echo and quantum memory for light. *New Journal of Physics*, 13(9), 093031 (2011) [Damon2011].

Revival of silenced echo and quantum memory for light

V Damon, M Bonarota, A Louchet-Chauvet, T Chanelière
and J-L Le Gouët¹

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS-UPR 3321, Univ. Paris-Sud, Bât. 505,
91405 Orsay cedex, France

E-mail: jean-louis.legouet@lac.u-psud.fr

New Journal of Physics **13** (2011) 093031 (12pp)

Received 26 April 2011

Published 20 September 2011

Online at <http://www.njp.org/>

doi:10.1088/1367-2630/13/9/093031

Abstract. We propose an original quantum memory protocol. It belongs to the class of rephasing processes and is closely related to two-pulse photon echo. It is known that the strong population inversion produced by the rephasing pulse prevents the plain two-pulse photon echo from serving as a quantum memory scheme. Indeed, gain and spontaneous emission generate prohibitive noise. A second π -pulse can be used to simultaneously reverse the atomic phase and bring the atoms back into the ground state. Then a secondary echo is radiated from a non-inverted medium, avoiding contamination by gain and spontaneous emission noise. However, one must kill the primary echo, in order to preserve all the information for the secondary signal. In the present work, spatial phase mismatching is used to silence the standard two-pulse echo. An experimental demonstration is presented.

Contents

1. Introduction	2
2. Rephasing in the ground state with silenced primary echo	3
3. Optimizing the rephasing step	5
4. Experimental	7
5. Conclusion	10
Acknowledgments	11
References	11

¹ Author to whom any correspondence should be addressed.

1. Introduction

The interaction of quantum light with an ensemble of atoms kindled intense research efforts in the past decade. The emblematic quantum memory challenge includes the conversion of a quantum state of light into an ensemble state of matter and the retrieval of a restored state of light. Light operates as a probe of the ensemble entangled state. Electromagnetically induced transparency (EIT) combined with the DLCZ generation of narrow-band heralded photons led to convincing experimental demonstrations in atomic vapors [1–3]. However, one cannot help but notice the small bandwidth offered by EIT-based protocols. Indeed, the spectrum of the incoming pulse of light has to fit the transparency window that is opened within the homogeneous width of the atomic transition. This practically limits the bandwidth to the megahertz range. To break this barrier, one may map the signal spectral components over the inhomogeneous width of the absorption line, according to the paradigm of the well-known photon echo scheme. In this context, solid state materials such as rare-earth ion-doped crystals (REIC) offer a prime alternative to atomic vapors since they combine the absence of motion with a long coherence lifetime and a large inhomogeneous width.

Although successful as a classical signal storage technique, photon echo does not work right away as a quantum memory procedure, as pointed out by several authors [4–6]. For instance, the two-pulse echo (2PE) suffers from the population inversion produced by the rephasing pulse. To efficiently reverse the phase of atomic coherences and get them phased together at a later time, this pulse has to simultaneously promote the atoms to the upper level of the optical transition. Working in a gain regime, detrimental to fidelity, the inverted medium also relaxes by spontaneous emission (SE), which further increases the intrinsic noise and makes this scheme inappropriate for the recovery of the initial quantum state of light. Last but not least, due to the spatial phase matching requirement, the 2PE signal propagates along the same direction as that of the driving fields. Hence, when composed of a few photons, the echo gets buried in the free induction decay (FID) long tail of the rephasing pulse [4].

To adapt the photon echo to quantum memory requirements, one has to get rid of massive population inversion. Original protocols such as the controlled reversible inhomogeneous broadening (CRIB) [7–10], the gradient echo memory (GEM) [11–16] and the atomic frequency comb (AFC) [17, 18] avoid population inversion. Either the phase reversal is produced by an external electric or magnetic field (CRIB and GEM) or rephasing just results from the initial preparation of the inhomogeneously broadened distribution (AFC). Those techniques have proved very successful in terms of efficiency [15, 19], multi-mode capacity [20, 21] and quantum fidelity [22, 23]. However, they all require a rather complex preparation step. In addition, by removing atoms from the absorption band, the preparation step reduces the intrinsic trapping capability of the medium.

In this paper, returning to 2PE basics, we propose an alternative approach, free from any preparation step. As already noted by Longdell [6, 24], the issue is population inversion and the resulting gain and SE noise, rather than the intense pulse in itself. A second intense pulse is able to bring the atoms back to the ground state, thus suppressing the undesired noise, and to simultaneously reverse the phase of the atoms, making them emit a secondary echo. The whole question is how to silence the primary 2PE and to preserve the integrity of the captured information until the emission of the secondary echo. Longdell [24] proposed to kill the primary echo by Stark-effect-induced interference [25, 26]. Here we propose to rely on spatial phase mismatching, which eliminates the need for an external field. This is explained in section 2,

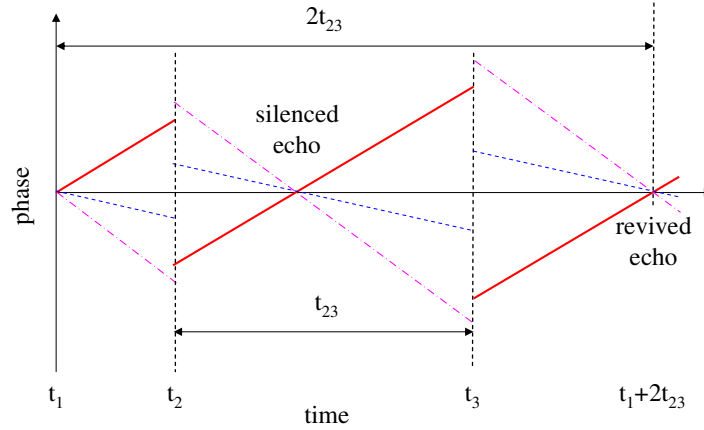


Figure 1. Revival Of Silenced Echo (ROSE). Excitation at time t_1 gives rise to atomic coherences. Departing from their initial common phase, the atomic coherences evolve at different rates, depending on their detuning from a reference. Rephasing pulses are shone at times t_2 and t_3 . The atomic coherences get phased together at time $t_1 + 2t_{12}$ but the primary echo is silenced by spatial phase mismatching. The echo is revived at time $t_2 + 2t_{23}$.

where we describe the storage protocol. In section 3, we discuss rephasing the Bloch vectors with a pair of ARPs. Experimental results are presented in section 4.

2. Rephasing in the ground state with silenced primary echo

Let us consider a simple 2PE scheme, operating on an ensemble of two-level atoms. First a weak pulse, carrying the information to be stored, shines on the storage medium at time t_1 . Then a strong pulse hits the medium at time t_2 , rotating the Bloch vector by an angle of π . The π -rotation simultaneously reverses the inhomogeneous phase shift and promotes the atoms to the upper level. The atomic coherences get phased together again at time $t_e = t_1 + 2t_{12}$, where $t_{ij} = t_j - t_i$, and radiate an echo signal. The optical thickness must be large enough to allow for efficient capture of the initial signal pulse. In such a medium, population inversion by the rephasing pulse yields important gain and SE. Both phenomena affect the fidelity of the information recovery. To bring the atoms back to the ground state, one just has to apply a second π -pulse at time $t_3 > t_e$. As shown in figure 1, a secondary echo is then emitted at time $t'_e = t_1 + 2t_{23}$ from ground state atoms, free of gain and SE noise. However, this simple procedure only enables us to recover a part of the stored information. Another part has already been carried away by the primary echo at time t_e . To avoid this loss of information one has to silence the primary echo.

We rely on spatial phase mismatching to kill the primary echo. The pulses, directed along wavevectors $\vec{k}_1$ and $\vec{k}_2$, give rise to echo emission in the direction $\vec{k}_e = 2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, provided $k_e = |\vec{k}_e|$ is close to $k = |\vec{k}_1| = |\vec{k}_2|$. More precisely, the condition reads: $(k_e - k)L \ll \pi$, where L stands for the medium thickness. Indeed, the radiated field must match the spatial phase of the radiating atomic macroscopic polarization. If $(k_e - k)L > \pi$, no echo is emitted at time t_e but the macroscopic polarization does survive. The violation of the phase matching condition does not affect atomic coherences. The spectral phase shift is reversed anyway at time t_3 and, despite the absence of the primary echo, a secondary echo can be emitted at time

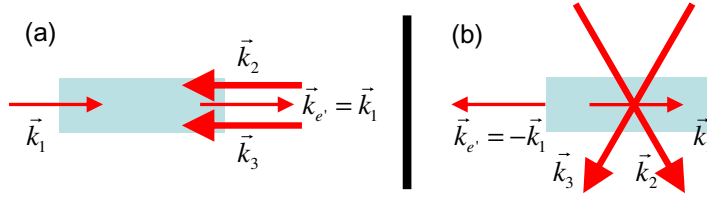


Figure 2. Beam configuration for signal recovery in the forward (a) and backward (b) directions. In (b), the rephasing pulses reach the medium (shaded area) from the sides.

$t'_e = t_1 + 2t_{23}$ provided $\vec{k}_e = 2\vec{k}_3 - \vec{k}_e = \vec{k}_1 + 2(\vec{k}_3 - \vec{k}_2)$ satisfies the phase matching condition. If $\vec{k}_3 = \vec{k}_2$, emission takes place in the same $\vec{k}_1$ direction as the initial signal, whatever the common wavevector direction of the two rephasing pulses. This occurs, for instance, when the rephasing pulses counterpropagate with the incoming signal, a configuration that strictly forbids the 2PE emission. We coin this process Revival Of Silenced Echo (ROSE), believing that it may give a new start to photon echo in the quantum memory context.

Although three successive pulses are involved in the echo formation, the ROSE scheme strongly differs from what is usually called a ‘three-pulse photon echo’. In the latter process, the atomic coherences resulting from interaction with the first pulse are converted into level population by the second pulse, and restored from population by the third pulse. Instead, all along the present echo process, the captured information is carried only by atomic coherences. The retrieval time of the echo lifts any ambiguity. It equals $t_1 + t_{23} + 2t_{12}$ in the conventional three-pulse echo, instead of $t_1 + 2t_{23}$ in the ROSE scheme.

The CRIB calculations [10] can be extended to ROSE quite directly. As in CRIB, the incoming signal pulse propagates through a spectrally uniform absorbing medium. Moreover, just as in CRIB, the signal is emitted when most atoms sit in the ground state. Hence, when $\vec{k}_3 = \vec{k}_2$, the recovery efficiency in the forward direction (see figure 2(a)) is expected to vary as $(\alpha L)^2 e^{-\alpha L}$, where α stands for the absorption coefficient, and may reach a maximum value of 54% at $\alpha L = 2$, in the absence of coherence relaxation. When the T_2 finite duration of the optical coherence is taken into account, the echo intensity can be expressed as $(\alpha L)^2 e^{-4t_{23}/T_2}$ times the transmitted intensity of the incoming signal, the latter itself being attenuated by the factor $e^{-\alpha L}$.

As in CRIB, a higher efficiency can be expected when the echo is recovered in the backward direction [7, 9, 10, 18]. This occurs when $(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = (\vec{k}_2, \vec{k}_3) = \pi/3$, which leads to $\vec{k}_e = -\vec{k}_1$ (see figure 2(b)). Since they illuminate the storage medium from the sides, the rephasing pulses penetrate a shorter distance and may undergo less propagation distortion. In the absence of coherence relaxation, the efficiency equals $(1 - e^{-\alpha L})^2$ and approaches 100% when $\alpha L \gg 1$.

As in CRIB [7, 9] or AFC [18, 27], two additional π -pulses may be used to convert the optical coherence into a ground state coherence and back, should a three-level Λ system be available. This way the storage time may be increased far beyond the optical coherence lifetime.

One may wonder whether the absence of primary echo really preserves the information mapping inside the medium. Indeed, when $(k_e - k)L > \pi$, the echo is killed but radiative emission remains in phase with atomic polarization over the distance $\pi/(k_e - k)$. Therefore, some information can creep in the medium over that coherence length. However, the mapping is not affected provided $\pi/(k_e - k)$ is much smaller than the α^{-1} characteristic distance.

The radiative migration is radically eliminated in counterpropagating configuration when $\vec{k}_2 = -\vec{k}_1$. Then the coherence length reduces to $1/3$ wavelength. When the echo is recovered in the backward direction, with $(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \pi/3$, the coherence distance does not exceed one wavelength.

The ROSE scheme clearly disposes of two insurmountable faults of the conventional 2PE, namely the gain noise and the signal contamination by the FID tail of the rephasing pulses. Spontaneous emission (SE) properties deserve further consideration. During the time interval between the two rephasing pulses, atoms spontaneously decay to the ground state. Those atoms are promoted back to the upper level by the second strong pulse. Therefore, although most atoms sit in the ground state at the moment of the secondary echo, there remains some residual SE noise. In conventional 2PE, when the medium is totally inverted by the rephasing pulse, SE brings a noise of about 1 photon within the time slot and the solid angle of echo emission [4, 6]. After a second rephasing pulse, SE from the few atoms left in the upper level brings a small noise contribution to the retrieved signal. Should only 90% of the atoms be brought back to the ground state, this would still improve the signal-to-noise ratio by a factor of 10 with respect to the 2PE scheme. In addition to those incoherent features, SE is involved in coherent rephasing processes, as discussed in [6]. In the inverted medium, SE can play the role of the first pulse in a 2PE scheme, give rise to an echo after the second rephasing pulse and spoil the ROSE. However, according to the 2PE phase matching condition, the revived SE noise is radiated close to the direction $\vec{k}_3$, at large angular distance from the ROSE.

Finally, the ROSE scheme combines the absence of preparation step with broad-band capability. Unlike the protocols based on a preparation step, such as CRIB, GEM or AFC, the present process does not waste the available optical thickness. All the atoms initially present within the signal bandwidth may participate in the quantum memory. The main spectral width limitation may come from the rephasing pulses. The energy they have to exchange with the medium is indeed proportional to the operation bandwidth. Chirped control pulses offer an advantageous alternative to π -pulses in terms of bandwidth. In the next section we show that they can significantly improve the ROSE rephasing step.

3. Optimizing the rephasing step

In the previous discussion, phase reversal is assumed to be achieved by π -pulses. This may not be the best solution. First, since the spectral range of a π -pulse is determined by its inverse duration, the pulse energy grows quadratically with the spectral width. Broadband operation demands too much energy. Moreover, when propagating through a broadband absorber, a π -pulse converts most of its energy into atomic excitation. According to the numerical solution of the Maxwell–Bloch equations [28], 50% of a rectangular π -pulse is absorbed at depth $z = 1.78/\alpha$. As a consequence, the pulse undergoes strong distortions. Simultaneous energy loss and area conservation, as prescribed by the McCall and Hahn theorem [29], entail temporal stretching, which corresponds to the narrowing of the excited spectral interval as the pulse proceeds deeper and deeper into the medium.

Instead of flipping all the Bloch vectors simultaneously, one may rotate them sequentially with the help of chirped pulses, whose frequency is scanned at a rate r . Under the conditions of adiabatic rapid passage (ARP), the Bloch vector adiabatically follows the driving vector on the Bloch sphere and π -radian flipping can be achieved efficiently over the scanning range of the driving field. Unfortunately, a single ARP generally does not give rise to an echo.

Indeed, because atoms with different frequencies are excited successively, the Bloch vectors cannot be phased together at a later time. More precisely, a τ -long incoming signal cannot be recovered in the shape of a τ -long echo, except when the chirped pulse behaves as a brief excitation, interacting with all the atoms quite simultaneously. Since the scanning time of the initially excited spectral interval is given by $2\pi/(r\tau)$, simultaneous excitation of all the atoms by the ARP requires $2\pi/(r\tau) \ll \tau$, or $\phi \ll 1$ where the refocusing parameter is defined as $\phi = 2\pi/(r\tau^2)$. In this $\phi \ll 1$ situation, the ARP does not represent any improvement with respect to π -pulse excitation.

Although inaccessible to a single ARP in general, refocusing can be achieved by a *pair* of chirped pulses. Then the atomic coherences can be phased together, whatever the size of ϕ . In other words, a *pair* of ARPs is able to give rise to an echo even when the time needed by each ARP to scan the atom ensemble is much larger than the inverse spectral width of this ensemble [30].

The simplest ARP process is obtained by chirping the frequency of a field with a fixed amplitude at a constant rate. However, the field has to be switched on and off at large detunings from the atoms. Finite duration excitation gives rise to oscillatory features [31]. To flip the Bloch vector over a well-defined finite spectral interval, a complex hyperbolic secant (CHS) pulse is more appropriate [32]. High transfer efficiency has been reached over the targeted spectral band, while the atoms are left at rest outside [33, 34].

Frequency chirped pulses seem to be able to keep their properties during propagation through an absorbing material [35]. Specifically, they lose a much smaller fraction of energy than a π -pulse. To illustrate this property, let us consider a CHS pulse. The Rabi frequency and instantaneous frequency temporal variations are, respectively, defined by

$$\Omega(t) = \Omega_0 \operatorname{sech}(\beta(t - t_0)), \quad (1)$$

$$\omega(t) = \omega_0 + \mu\beta \tanh(\beta(t - t_0)). \quad (2)$$

According to equation (2), the field is chirped over a $2\mu\beta$ -wide interval centered at ω_0 . The chirp rate $d\omega(t)/dt$ reaches its maximum value $r_0 = \mu\beta^2$ at $t = t_0$. When the atoms are promoted to the upper level, the energy conveyed to the medium reads as

$$W_{\text{at}} = 2\mu\beta A L n \hbar \omega_0, \quad (3)$$

where L , A and n , respectively, represent the medium length and cross-sectional area and the spectro-spatial atomic density. The incoming energy reads as

$$W_{\text{in}} = \frac{1}{2} A c \epsilon_0 \int dt |\Omega(t) \hbar / d|^2 = A c \epsilon_0 |\Omega_0 \hbar / d|^2 / \beta, \quad (4)$$

where d represents the transition dipole moment. The fraction of incoming energy that is stored in the medium can be expressed in terms of the absorption coefficient $\alpha = \pi \omega_0 d^2 n / (c \hbar \epsilon_0)$ as

$$\frac{W_{\text{at}}}{W_{\text{in}}} = \frac{2}{\pi} \frac{r_0}{\Omega_0^2} \alpha L. \quad (5)$$

Since adiabatic passage precisely requires that $r_0/\Omega_0^2 \ll 1$ [33], the storage of a small fraction of energy in the medium can be made consistent with the adiabatic condition, whatever be the optical depth αL . As pointed out above, the strong distortion of a π -pulse propagating through an absorbing medium is connected with the loss of an important fraction of initial energy. Traveling through the same medium, a CHS pulse might undergo less distortion, in connection with a much lower energy loss, and preserve its initial properties much deeper into the medium.

4. Experimental

Experimentally we pursue a twofold objective. Firstly, we need to confirm the generation of the revived echo, with the expected efficiency, when the primary echo is silenced by spatial phase mismatching. We concentrate on the counterpropagating configuration (see figure 2(a)) where mismatching is maximum. The two rephasing pulses follow the same path, in an opposite direction to the signal field. Secondly, we want to verify that the second rephasing pulse actually brings the atoms back to the ground state.

A first experiment is conducted in a 0.5 at.% Tm^{3+} :YAG crystal operating at 793 nm. The sample is cooled down to 2.8 K in a variable temperature liquid helium cryostat. The counterpropagating light beams are split from a home-made, extended cavity, continuous wave, ultra-stable semi-conductor laser [36], featuring a stability better than 1 kHz over 10 ms. To manage the rephasing and signal paths separately, we make a small angle of $\approx 2^\circ$ between them. This way we not only extract the echo easily but also further reject reflections from the cryostat windows. Those precautions will prove essential in shot-noise limited measurements.

The signal beam waist is adjusted to $30 \mu\text{m}$, with a rephasing beam 1.6 times bigger. All the fields are polarized along the [001] crystallographic axis [37]. In order to avoid propagation effects, we slightly detune the laser from the absorption line center to $\alpha L = 1.05$.

The rather high Tm^{3+} concentration reduces T_2 to less than $50 \mu\text{s}$, making the ROSE wither fast. This impacts on the parameter accessible range. To simultaneously satisfy $T_2\beta \gg 1$ and $\mu\beta^2 \ll \Omega_0^2$ (adiabatic passage condition), one is led to the minimum $\mu = 2$ acceptable value, with $\beta/(2\pi) = 120 \text{ kHz}$. Hence, population is inverted over a $\mu\beta/\pi = 480 \text{ kHz}$ -wide spectral interval.

With a rephasing pulse separation of $t_{23} = 13 \mu\text{s}$, the storage time is equal to $26 \mu\text{s}$. The $3.5 \mu\text{s}$ -long (full-width at half-maximum) incoming signal and the recovered ROSE are displayed in figure 3(a). Spatial-mode filtering through a single-mode fiber at the crystal output efficiently rejects stray light from the CHS rephasing pulses. Those pulses are monitored with a control detector, as shown in figure 3(b). As can be seen in this figure, we truncate CHS waveforms to $6\beta^{-1}$. The recovery efficiency of $\approx 10\%$ is consistent with the $(\alpha L)^2 e^{-\alpha L - 4t_{23}/T_2}$ predicted value, setting $T_2 = 42 \mu\text{s}$. The latter T_2 value agrees with independent measurements.

The refocusing parameter defined in section 3 reads as $\phi = 2\pi/(\mu\beta^2\tau^2)$. To accomodate the incoming pulse bandwidth, CHS parameters must satisfy $\mu\beta\tau > \pi$, which results in $\phi < 2\mu/\pi$. With $\mu = 2$, ϕ remains close to unity, thus allowing for some refocusing of the Bloch vectors after the first CHS pulse. It may be interesting to check that complete refocusing can be achieved by a pair of CHS, even when $\phi \gg 1$, i.e. when coherences cannot be phased together after a single CHS. These conditions are met in the next experiment.

We undertake the second experiment in a 0.005 at.% Er^{3+} :YSO, 7.5 mm-thick, crystal at $1.5 \mu\text{m}$. This material offers attractively slow relaxation rates that allow time for the ROSE to bloom. The upper level decays in 10 ms and we have measured an optical coherence lifetime T_2 as large as $230 \mu\text{s}$. To reach such a high T_2 value, one cools down the crystal to 2 K and one lifts the Kramers degeneracy with a magnetic field of $\approx 2.2 \text{ T}$. The light beams are directed along the b axis, perpendicular to the magnetic field. The crystal is birefringent and T_2 is optimized when the neutral lines D_1 and D_2 are oriented at 45° from the magnetic field [38]. In spite of its attractive T_2 figure, Er^{3+} :YSO exhibits some drawbacks with respect to Tm^{3+} :YAG. In YSO, the host matrix birefringence should affect side illumination in the configuration described in figure 2(b). Besides, in Er^{3+} :YSO one does not enjoy a Λ three-level system configuration as in

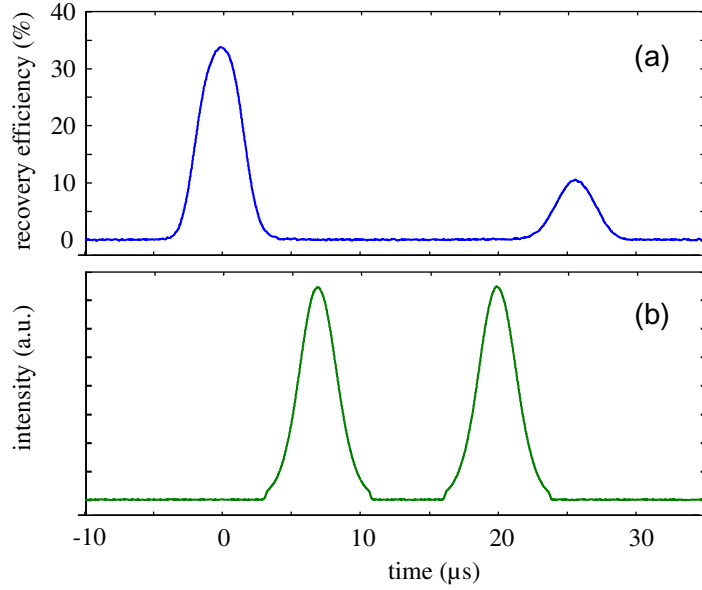


Figure 3. ROSE in Tm^{3+} :YAG. Opacity is adjusted to $\alpha L = 1.05$. The incoming pulse and the echo are displayed in (a). Counterpropagating with the CHS rephasing pulses, they are monitored with a control detector and represented in (b). In (a), efficiency refers to the intensity of the incoming signal, measured at the input side of the crystal.

Tm^{3+} :YAG, which is required for optical-to-spin coherence conversion (see [39] and references therein). Last but not least, single-photon detectors are more efficient at Tm^{3+} :YAG transition wavelength.

The light source is an erbium-doped fiber, distributed feedback, commercial laser (KOHERAS). This source features good stability, with a coherence time larger than 1ms and a jitter of a few kHz over 100 μs . The rephasing beam is 2.5 times bigger than the signal beam, whose beam waist is measured to be 45 μm at the crystal. All the fields are polarized along D_1 . The opacity αL reaches ≈ 2 at the line center. The echo is extracted by a beam splitter and collected on a photodiode.

First we check the inversion efficiency of a CHS pulse with parameters $\beta = 125 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ and $\mu = 10$, corresponding to excitation over a 400 kHz-wide interval. As before, the CHS duration is limited to $6\beta^{-1}$. Slightly detuning the laser from the line center, we measure an opacity $\alpha L = 0.71$. A 3 μs -long (full-width at half-maximum) Gaussian-shaped signal pulse is shone through the crystal. We successively detect the transmitted profile before and after inversion by a counterpropagating CHS pulse (figure 4). The pulse sequence is repeated at 10 Hz rate. We observe an amplification factor of 3.55. Through a totally inverted medium, with an upper-level population $n_b = 1$, this factor should reach $e^{2\alpha L} = 4.13$. The measured factor corresponds to $n_b = \text{Ln}(3.55)/(2\alpha L) = 0.89$.

With the same CHS parameter values, the same input signal duration and the same opacity, we check the ROSE process. In the experiment presented in figure 5, the rephasing pulse separation is adjusted to 41 μs , which leads to a storage time of 82 μs . The recovery efficiency, as measured with respect to the incoming pulse at the crystal input, reaches 12%, in excellent agreement with the $(\alpha L)^2 e^{-\alpha L - 4t_{23}/T_2}$ expected value (see section 2). As shown in figure 5

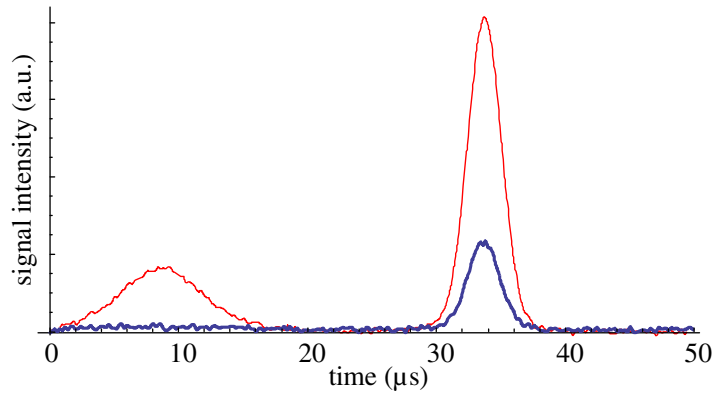


Figure 4. Population inversion by a CHS pulse. A probe pulse is detected before (thick blue line) and after (red thin line) excitation by a 400 kHz-wide CHS pulse. Some stray light from the cryostat windows reveals the CHS profile and time position.

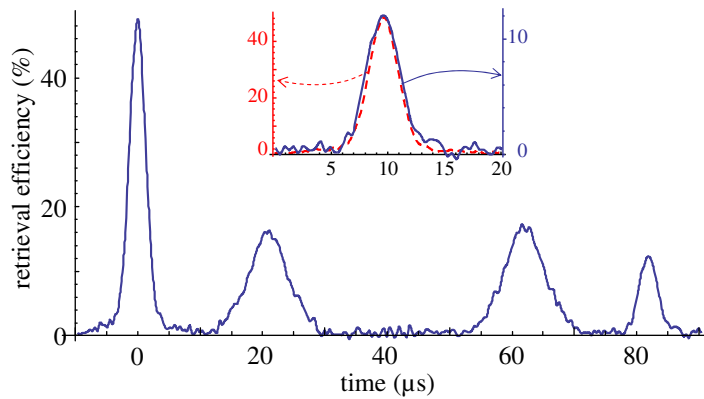


Figure 5. ROSE in $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$. After the arrival of a $3\ \mu\text{s}$ -long weak pulse, two CHS pulses successively illuminate the crystal from the opposite direction. They cover a 0.4 MHz wide spectral interval. Their time separation is adjusted to $41\ \mu\text{s}$. Their time evolution is revealed by reflections from the cryostat windows. The echo is radiated $82\ \mu\text{s}$ after the first pulse. The incoming signal (dashed line) and echo (solid line) temporal profiles are compared in the inset.

(inset), the temporal profile of the echo nearly coincides with that of the incoming pulse, showing that the CHS spectral range is correctly adjusted to the signal width. The refocusing parameter ϕ reaches $2\pi/(\mu\beta^2\tau^2) \approx 4.5$, attesting to the absence of Bloch vector refocusing after the first CHS pulse.

To check the CHS ability to bring ions back to the ground state, we probe the crystal transmission spectrum after illumination by one or two CHS pulses. In order to optimize the beam overlap, we slightly modify the setup. All the light fields now copropagate, being carried by a single beam. The detector is protected from the intense CHS pulses by an acousto-optic modulator operating as an optical switch. The transmitted light is detected through a pinhole that selects the uniformly excited central region of the crystal. The CHS pulses are defined by the same β and μ values as above. The Rabi frequency is adjusted to $\approx 3.5 \times 10^6\ \text{s}^{-1}$. The

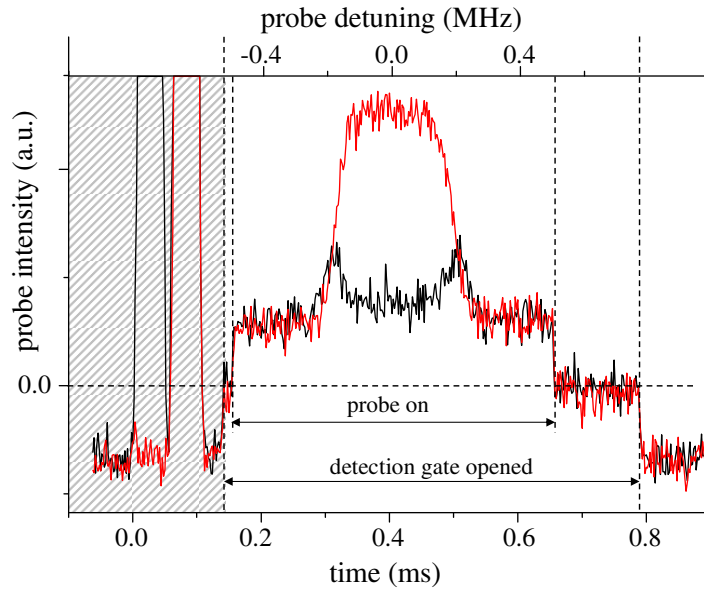


Figure 6. The transmission spectrum is probed after illumination by one (red line) or two (black line) CHS pulses. The probe pulse is scanned over 1 MHz in 0.5 ms. The upper level population reaches 0.7 after one CHS and drops to less than 0.1 after the second CHS. The opacity is adjusted to $\alpha L = 1.0$.

probe field is scanned over a 1 MHz-wide interval in 0.5 ms. The recorded spectra are displayed in figure 6. The inverted interval edges are not vertical. Instead they exhibit a finite width of ≈ 50 kHz, consistent with the computed value obtained with $\mu = 10$ and a finite pulse duration of $6\beta^{-1}$. The laser being tuned to $\alpha L = 1.0$, the upper-level population reaches 0.7 after one CHS and drops to less than 0.1 after the second CHS. As discussed in section 2, this should be enough to reduce the spontaneous emission noise by 10 with respect to the conventional 2PE scheme.

5. Conclusion

We have described an original ROSE scheme where an echo signal is radiated from ground state atoms with optimum efficiency. This process remedies the conventional photon echo drawbacks [4, 5, 24] in the prospect of quantum storage. In the small optical thickness regime, optimum recovery efficiency has been reached experimentally. Complex hyperbolic secant pulses, more robust to propagation than π -pulses, have proved efficient in rephasing the atomic coherences. With respect to previously proposed schemes such as CRIB and AFC, ROSE avoids complex and optical-depth consuming preparation steps while preserving the photon echo broadband and multimode capability.

The ROSE scheme can be extended to Raman excitation, in situations where the Raman transition may offer a large bandwidth, such as in a vapor, where non-collinear signal and coupling beams make the inhomogeneous broadening adjustable [40]. The primary echo can be killed by just switching off the coupling beam at the rephasing time. One needs two sublevels only in the ground state, instead of three as in [40].

Acknowledgments

We acknowledge stimulating and fruitful discussions with J J Longdell. This work was supported by the European Commission through the FP7 QuRep project, by the national grant ANR-09-BLAN-0333-03 and by the Direction Générale de l'Armement.

References

- [1] Chanelière T, Matsukevich D, Jenkins S, Lan S, Kennedy T and Kuzmich A 2005 *Nature* **438** 833
- [2] Eisaman M D, André A, Massou F, Fleischhauer M, Zibrov A and Lukin M D 2005 *Nature* **438** 837
- [3] Appel J, Figueroa E, Korystov D, Lobino M and Lvovsky A I 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 093602
- [4] Ruggiero J, Le Gouët J L, Simon C and Chanelière T 2009 *Phys. Rev. A* **79** 053851
- [5] Sangouard N, Simon C, Minář J V, Afzelius M, Chanelière T, Gisin N, Le Gouët J L, de Riedmatten H and Tittel W 2010 *Phys. Rev. A* **81** 062333
- [6] Ledingham P M, Naylor W R, Longdell J J, Beavan S E and Sellars M J 2010 *Phys. Rev. A* **81** 012301
- [7] Moiseev S A and Kröll S 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 173601
- [8] Nilsson M and Kröll S 2005 *Opt. Commun.* **247** 393
- [9] Kraus B, Tittel W, Gisin N, Nilsson M, Kröll S and Cirac J I 2006 *Phys. Rev. A* **73** 020302
- [10] Sangouard N, Simon C, Afzelius M and Gisin N 2007 *Phys. Rev. A* **75** 032327
- [11] Alexander A L, Longdell J J, Sellars M J and Manson N B 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 43602
- [12] Hétet G, Longdell J J, Alexander A L, Lam P K and Sellars M J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 23601
- [13] Hétet G, Longdell J J, Sellars M J, Lam P K and Buchler B C 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 203601
- [14] Longdell J J, Hétet G, Lam P K and Sellars M J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 032337
- [15] Hedges M P, Longdell J J, Li Y and Sellars M J 2010 *Nature* **465** 1052
- [16] Lauritzen B, Minář J, de Riedmatten H, Afzelius M, Sangouard N, Simon C and Gisin N 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 080502
- [17] de Riedmatten H, Afzelius M, Staudt M U, Simon C and Gisin N 2008 *Nature* **456** 773
- [18] Afzelius M, Simon C, de Riedmatten H and Gisin N 2009 *Phys. Rev. A* **79** 052329
- [19] Bonarota M, Ruggiero J, Le Gouët J L and Chanelière T 2010 *Phys. Rev. A* **81** 033803
- [20] Usmani I, Afzelius M, de Riedmatten H and Gisin N 2010 *Nat. Commun.* **1** 1
- [21] Bonarota M, Le Gouët J L and Chanelière T 2011 *New J. Phys.* **13** 013013
- [22] Saglamyurek E, Sinclair N, Jin J, Slater J A, Oblak D, Bussi eres F, George M, Ricken R, Sohler W and Tittel W 2011 *Nature* **469** 512
- [23] Clausen C, Usmani I, Bussi eres F, Sangouard N, Afzelius M, de Riedmatten H and Gisin N 2011 *Nature* **469** 508
- [24] McAuslan D, Ledingham P, Naylor W, Beavan S, Hedges M, Sellars M and Longdell J 2011 *Phys. Rev. A* **84** 022309
- [25] Meixner A J, Jefferson C M and Macfarlane R M 1992 *Phys. Rev. B* **46** 5912
- [26] Chanelière T *et al* 2008 *Phys. Rev. B* **77** 245127
- [27] Afzelius M *et al* 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 040503
- [28] Ruggiero J, Chanelière T and Le Gouët J L 2010 *J. Opt. Soc. Am. B* **27** 32
- [29] McCall S L and Hahn E L 1969 *Phys. Rev.* **183** 457
- [30] Lauro R, Chanelière T and Le Gouët J L 2011 *Phys. Rev. B* **83** 035124
- [31] Vitinov N V and Garraway B M 1996 *Phys. Rev. A* **53** 4288
- [32] Roos I and M lmer K 2004 *Phys. Rev. A* **69** 022321
- [33] de Seze F, Dahes F, Crozatier V, Lorger  I, Bretenaker F and Le Gou t J L 2005 *Eur. Phys. J. D* **33** 343
- [34] Rippe L, Nilsson M, Kr  ll S, Klieber R and Suter D 2005 *Phys. Rev. A* **71** 062328
- [35] Zafarullah I, Tian M, Chang T and Babbitt W R 2007 *J. Lumin.* **127** 158
- [36] Crozatier V, de Seze F, Haals L, Bretenaker F, Lorger  I and Le Gou t J L 2004 *Opt. Commun.* **241** 203

- [37] Sun Y, Wang G M, Cone R L, Equall R W and Leask M J M 2000 *Phys. Rev. B* **62** 15443
- [38] Böttger T 2002 Laser frequency stabilization to spectral hole burning frequency reference in erbium-doped crystals: material and device optimization *PhD Thesis* Montana State University, Bozeman, MT
- [39] Louchet A, Le Du Y, Bretenaker F, Chanelière T, Goldfarb F, Lorgère I, Le Gouët J-L, Guillot-Noël O and Goldner P 2008 *Phys. Rev. B* **77** 195110
- [40] Le Gouët J-L and Berman P R 2009 *Phys. Rev. A* **80** 012320

G Efficiency optimization for atomic frequency comb storage

M. Bonarota, J. Ruggiero, J. L. L. Gouët, T. Chanelière. Efficiency optimization for atomic frequency comb storage. *Phys. Rev. A*, 81(3), 033803 (2010) [Bonarota2010]

Efficiency optimization for atomic frequency comb storage

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

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

(Received 18 November 2009; published 5 March 2010)

We study the efficiency of the atomic frequency comb storage protocol. We show that for a given optical depth, the preparation procedure can be optimized to significantly improve the retrieval. Our prediction is well supported by the experimental implementation of the protocol in a $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ crystal. We observe a net gain in efficiency from 10 to 17% by applying the optimized preparation procedure. In the perspective of high bandwidth storage, we investigate the protocol under different magnetic fields. We analyze the effect of the Zeeman and superhyperfine interaction.

DOI: [10.1103/PhysRevA.81.033803](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.033803)

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

I. INTRODUCTION

The prospect of a quantum memory (QM) for light naturally emerges in the atomic physics community since it deals with the most fundamental interaction of light with matter. Atomic vapors have specifically drawn the attention because they are model systems with good coherence properties. Experimental results have rapidly followed with convincing proof-of-principle realizations. Most of them are based on stopped-light experiment and derived from the electromagnetically induced transparency phenomenon. More generally, the protocols exploit a two-photon transition to benefit from the long lifetime of the ground-state spin coherence [1]. A complete storage requires a large optical depth which also limits the signal bandwidth. As a consequence, the storage bandwidth is usually narrow (megahertz range in practice). The quest of wideband storage requires drastic changes. The protocols and the material should intrinsically offer a broad interaction linewidth. Inspired by impressive realizations in the classical domain [2,3], the photon-echo techniques in rare-earth-ion doped crystals (REIC) appear as a prime alternative.

Indeed, REIC have remarkable coherence properties at low temperature. The large natural inhomogeneous broadening gives a large potential storage bandwidth. It is not a limitation for the coherent transient phenomena. It has to be compared to the narrow homogeneous width (three to four orders of magnitude narrower) to yield a large number of spectral channels [4,5]. This is alternatively interpreted as a high multimode capacity [6], crucial for quantum repeaters application.

Despite efficient demonstrations of classical storage [7], the photon-echo techniques should be considered with care. A QM for light imposes different constraints. For example, the standard two-pulse photon echo (2PE) can be extremely efficient. Indeed the medium itself can turn into an intrinsic amplifier by level population inversion. This regime is inappropriate for a QM since it deteriorates the fidelity [8]. New specific protocols—namely the controlled reversible inhomogeneous broadening (CRIB) [9–11] and the atomic frequency comb (AFC) [12]—have been devised. They keep the photon echo efficiency and bandwidth, but they get around

the fidelity degradation that limits the 2PE usage for QM application. These techniques fully use the primary feature of the REIC (e.g., narrow homogeneous width, large inhomogeneous broadening, and spectral hole-burning preparation procedures).

The CRIB protocol has been successfully implemented with record efficiencies [13,14]. It does not suffer from the previously mentioned limitations of the 2PE because the population mainly stays in the ground state (no inversion). The CRIB has been implemented experimentally for weak light fields at the single-photon level [15]. This recent experiment shows a low noise level given by technical limitations. In the same context, the AFC has been recently proposed [12]. Experimental results followed immediately afterward, demonstrating also good noise figure and large efficiencies [16,17]. As compared to these realizations where the signal is stored directly in the optical coherence (optical AFC), the storage has also been performed in the spin coherences (Raman AFC) [18]. This critical step opens the way to long memory time, on-demand retrieval, and high multimode capacity.

The CRIB and the AFC have a lot in common since they are both inspired by the photon-echo technique. They both involve a rephasing of the optical coherences. The long storage time is obtained by a Raman transfer to the long-lived hyperfine coherences. The main difference comes from the preparation procedure. For the CRIB, a narrow absorption profile is tailored within the natural inhomogeneous broadening. An electric field gradient is then used to control and reverse the artificial broadening of a Stark effect sensitive medium. The hole-burning selection procedure has been optimized and may require a large number of independent pulses [19]. For the AFC, the absorption profile exhibits a periodic distribution of very absorbing peaks. The preparation procedure is based on spectral hole-burning toward a shelving state as in CRIB. A periodic optical pumping spectrum produces the corresponding modulation of the population. This is sufficient to produce an optical AFC echo without external control of the atomic transition frequency. On the one hand, the experimental implementation is not restricted to Stark sensitive REIC. On the other hand, a rudimentary preparation procedure based on the repetition of pulse pairs has allowed proof-of-principle demonstrations with relatively large efficiencies [16,17]. These two points explain the rapid experimental progress [16–18] since the theoretical proposal of the AFC [12].

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

In this article, we study the preparation procedure. We specifically optimize the pulse sequence to improve the efficiency of the optical AFC. We experimentally design the optical pumping spectrum to obtain the appropriate atomic comb. We also investigate the influence of the magnetic field. It changes the level structure and then the broadband optical pumping dynamics. This study is relevant in the large bandwidth regime required for quantum repeaters application.

The article is arranged as follows. In Sec. II, we show how the preparation sequence can be optimized for an efficient optical AFC retrieval. The results are analyzed by modeling the population dynamics during the preparation stage. In Sec. III, we study the efficiency under a varying magnetic field and show the influence of the Zeeman and superhyperfine effects.

II. COMB TAILORING AND STORAGE EFFICIENCY

The generation of an echo out of a spectrally periodic medium is the key ingredient to explain the AFC storage. This is interpreted as a dipole rephasing in the time domain [12,17] or alternatively as diffraction on a spectral grating [17,20]. This latter approach is fruitful to calculate the retrieval efficiency. We then describe the ideal comb shape that leads to the maximum efficiency. This analysis is well supported by the experimental results obtained in Tm^{3+} :YAG.

A. Optimized AFC shape

The key idea of the AFC protocol is the storage capacity of a spectrally periodic medium. This observation connects the AFC to the well-known three-pulse photon echo (3PE) or more generally to space-and-time-domain holography. For the 3PE, the first two engraving pulses create a population modulation. The third pulse is diffracted and produces an echo. The AFC is a direct descendant of the 3PE in that sense. To increase the population modulation depth by accumulation, the engraving sequence can be repeated. The AFC preparation procedures used so far also involve accumulated pulse pairs [16,17]. However, the AFC shows some major differences with the 3PE, well suited for quantum storage. On one side, the protocol implies a Raman transfer to obtain a long memory time, on-demand retrieval, and perfect efficiency. On the other side, the comb shape is a very singular periodic modulation. In the limit of perfect retrieval, narrow absorbing peaks should be separated by fully transparent regions [12]. This situation requires a large initial optical depth. This is usually a limiting factor in practice. We now can see how to optimize the comb shape to obtain the largest efficiency for a given optical thickness.

1. Retrieval efficiency

We here calculate the retrieval efficiency. In the spectral domain, it is deduced from the comb structure. We consider the diffraction of a spectral grating. This model has been explained previously, we here simply review the main results [16,20].

We use the Bloch-Maxwell equations assuming the slowly varying amplitude and the rotating wave approximations [21].

In the weak signal limit [22], the field propagation and atomic evolution are given by

$$\begin{aligned}\partial_z \Omega(z, t) + \frac{1}{c} \partial_t \Omega(z, t) &= -\frac{i}{2\pi} \int_{\Delta} \alpha(\Delta) \mathcal{P}(\Delta; z, t) \\ \partial_t \mathcal{P}(\Delta; z, t) &= -(i\Delta + \gamma) \mathcal{P}(\Delta; z, t) - i\Omega(z, t),\end{aligned}\quad (1)$$

where $\Omega(z, t)$ is the Rabi frequency and $\mathcal{P}(\Delta; z, t) = u(\Delta; z, t) + i v(\Delta; z, t)$ is the polarization including the in-phase and out-of-phase components of the Bloch vector (γ is the homogeneous linewidth). We model the inhomogeneous broadening by a frequency dependent absorption coefficient $\alpha(\Delta)$, including the coupling with individual dipoles and the inhomogeneous line shape.

The spectral periodic structure produces a series of echos. We decompose the absorption coefficient distribution in a Fourier series $\alpha(\Delta) = \sum_n \alpha_n e^{-in\Delta T}$ ($1/T$ is the comb period). Successive echos whose respective amplitudes are a_p appear at times pT , i.e., $\Omega(z, t) = \sum_{p \geq 0} a_p(z) \Omega(0, t - pT)$, $p \geq 0$ for causality reason.

We would like to forewarn the reader. We here summarize the propagation through the spectrally prepared medium. For reason of simplicity, the comb is modeled by a frequency selective absorption coefficient. It may give the wrong impression that the retrieval is a pure absorption effect. The causality imposes that the successive echos appear after the arrival of the signal. This natural assumption is actually strong because it connects the field amplitude and phase by the Kramers-Kronig relation. The interplay among the field amplitude, phase, and energy will be specifically addressed later in subsection II A3.

So far, the different amplitudes of successive echos are recursively calculated from the propagation equation in the Fourier space. We here focus on the amplitude of the first echo. It defines the retrieval efficiency $\eta(L) = |a_1(L)|^2$ (L is the crystal length) and is given by successive integration with the boundary conditions $a_0(0) = 1$ matching the incoming field intensity and $a_1(0) = 0$:

$$\begin{aligned}\partial_z a_0(z) &= -\frac{1}{2} \alpha_0 a_0(z) \\ \partial_z a_1(z) &= -\frac{1}{2} [\alpha_0 a_1(z) + 2\alpha_{-1} a_0(z)].\end{aligned}\quad (2)$$

We finally obtain an analytic expression for the efficiency connecting the comb shape and the first two coefficients of the absorption coefficient Fourier expansion:

$$\eta(L) = |\alpha_{-1} L|^2 e^{-\alpha_0 L}. \quad (3)$$

It has been independently calculated by Sönajal *et al.* in the context of space-and-time-domain holography [20, eq. (13)]. We now address the problem of optimizing the comb shape to maximize the efficiency.

2. Shape optimization

This question can be seen as a pure mathematical constrained optimization. Our analysis is guided by physical arguments. The constraints are practically given by the experimental limitations: $\alpha(\Delta)$ is positive and bounded by α_M (α_M is limited by the available number of atoms). These limitations are intuitive even if negative values of $\alpha(\Delta)$ (gain)

could be considered. The presence of gain is possible when the population is inverted. It is an interesting situation for classical storage (internal amplification) and has been investigated experimentally with REIC [23,24]. Population inversion is not permitted for quantum storage since it reduces the fidelity of a quantum memory [8]. In that case $\alpha(\Delta)$ should be bounded by 0 and α_M .

The retrieval efficiency [Eq. (3)] shows a competition between the average absorption α_0 and modulation of the absorption $|\alpha_{-1}|$ which gives rise to the echo. Both are not independent since $\alpha(\Delta)$ is bounded. We can now wonder what is the function $\alpha(\Delta)$ that optimizes the efficiency representing the appropriate trade-off between average absorption and its modulation $|\alpha_{-1}|$.

Because the efficiency [Eq. (3)] is a monotonic function of $|\alpha_{-1}|$ and α_0 , one can guess that the constraints are saturated: $\alpha(\Delta)$ reaches its boundaries. In other words, one expects that the absorption keeps its maximum accessible values, i.e., 0 or α_M . The absorption profile should then have a square shape. The width of the square peaks is calculated by maximizing the efficiency [Eq. (3)].

So we define α^S , a $2\pi/T$ -periodic function, between $-\pi/T$ and π/T with $\alpha^S(\Delta) = \alpha_M$ between $-\Gamma$ and Γ and 0 elsewhere [see dashed lines in Fig. 1(a), for example].

The coefficients of the Fourier series are then $\alpha_0^S = \alpha_M \frac{\Gamma T}{\pi}$ and $\alpha_{-1}^S = \alpha_M \frac{\sin(\Gamma T)}{\pi}$. The proper width Γ_{OPT} that maximizes the efficiency is

$$\Gamma_{\text{OPT}}^S = \frac{1}{T} \arctan\left(\frac{2\pi}{\alpha_M L}\right). \quad (4)$$

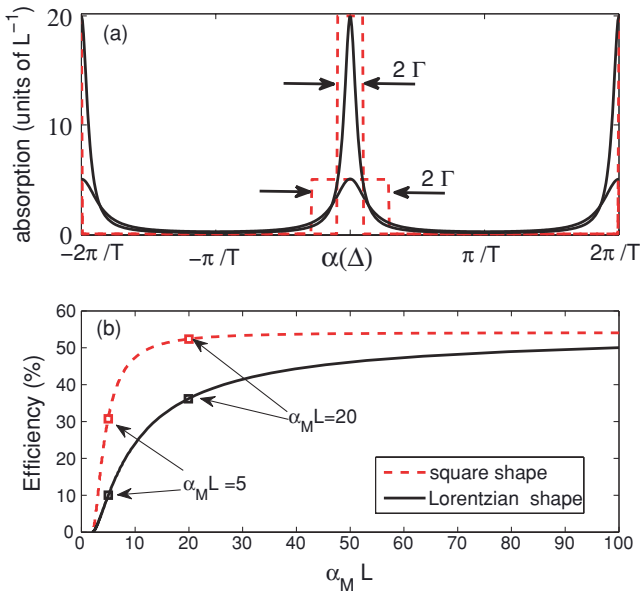


FIG. 1. (Color online) (a) For a given maximum optical thickness ($\alpha_M L = 5$ and $\alpha_M L = 20$ in that case), we plot the combs that optimize the efficiency in the two following cases: the comb is made of well-separated Lorentzian peaks (solid black line; see Ref. [12] for details) or square-shaped peaks (red dashed line). (b) Optimum efficiency for Lorentzian and square shape peaks as a function of the maximum optical depth $\alpha_M L$. The four square symbols give the efficiency for the shapes in (a).

It only depends on the maximum optical thickness $\alpha_M L$. The corresponding efficiency is then given by

$$\eta_{\text{OPT}}^S = \left(\frac{\alpha_M L}{\pi}\right)^2 \sin^2(\Gamma_{\text{OPT}}^S T) e^{-2\alpha_M L \Gamma_{\text{OPT}}^S T / \pi}. \quad (5)$$

At low optical thickness, $\Gamma_{\text{OPT}}^S = \pi/(2T)$ corresponding to a one-half duty cycle (or finesse equals 2). The width should then decrease for very absorbing media. The same behavior has been derived by assuming that the comb is made of well-separated Lorentzian peaks [12,17]. Analytic formula are obtained as well for the optimum width maximizing the efficiency (see Ref. [12] for details). We then compare these two situations (see Fig. 1).

We clearly observe an improvement for the square-shaped peaks [red dashed line in Fig. 1(a)]. The efficiency of the optical AFC is limited to 54% in the forward direction. This limitation is due to the absence of gain as discussed previously and is the same for the CRIB protocol [11]. This asymptotic behavior is due to the trade-off between a good absorption of the signal and a moderate reabsorption at the retrieval. We see that even a limited optical thickness (typically $\alpha_M L \sim 10$) gives an efficiency close to 50% for the square shape. A comparable improvement is expected in the backward direction (Raman AFC).

3. Field and energy propagation

Our analysis connects the absorption spectrum and the retrieval mechanism. As previously mentioned, it may give an incorrect image of the protocol. This point is made explicit when the energy propagation is considered in the spectral domain. It is derived from the Bloch-Maxwell equations [Eqs. (1)].

$$\partial_z |\tilde{\Omega}(z, \omega)|^2 = -\alpha(\omega) \otimes \mathcal{L}(\Delta) |\tilde{\Omega}(z, \omega)|^2. \quad (6)$$

The optical power spectral density $|\tilde{\Omega}(z, \omega)|^2$ is defined by the Fourier transform of field in pulsed regime. The absorption is convoluted by the homogeneous line shape $\mathcal{L}(\Delta) = \frac{\gamma}{\gamma^2 + \Delta^2}$. The convolution is negligible as soon as the spectral structures are much larger than the homogeneous width γ . This is the case for the experiment. The equation tells us that the medium acts as a spectral filter removing spectral components from the optical spectrum. Nevertheless, it may be misleading to properly interpret the AFC protocol. The protocol is very efficient at large optical thickness with extremely narrow peaks as demonstrated in subsection II A2. In this situation, the absorbing spectral filter has a marginal influence on the optical power spectrum since the absorbing windows are very narrow. The power spectrum is then fully transmitted [Eq. (6)]. The retrieval cannot be interpreted as a simple absorbing filtering effect. The dispersion within the transparent regions has a strong effect. It allows the generation of the echo without any significant modification of the power spectrum [Eq. (6)]. We do not explicitly calculate the phase propagation (dispersion) but it is embedded in the model because of the causality. The causality actually connects the field amplitude and phase by the Kramers-Kronig relation. Even if our analysis is based on the absorption coefficient $\alpha(\Delta)$, the dispersion plays a crucial role for AFC protocol.

Our discussion is also an interesting way to underline the singularity of a square-shaped combs. The transmission spectrum $e^{-\alpha(\Delta)L}$ should be distinguished from the absorption spectrum $-\alpha(\Delta)L$. The transmission spectrum has also a square shape. The transmission peaks have the same width Γ , whatever the maximum optical depth. This is not the case for Lorentzian absorption peaks. In transmission, the structures become wider for a large optical depth. They are typically broadened by a factor $\sqrt{\alpha_M L}$. The transparent dispersive regions are then truncated. This reduces the energy transmission whose importance has been emphasized previously. This physical argument *a posteriori* justifies the expected improvement for square-shaped combs.

B. Experimental square-shaped comb

In order to support our prediction, we experimentally prepare square-shaped peaks in the absorption spectrum. We expect a significant improvement as compared to the rudimentary preparation procedure that has been used so far (accumulation of pulse pairs see Refs. [16,17]). This latter has the advantage of simplicity. It only needs two pulses of equal intensity. This produces a periodic spectrum for the optical pumping light. It is then not surprising that this procedure creates a comb like structure through the hole-burning process. The production of the comb has been alternatively interpreted as Ramsey fringes [16]. The relationship between the pumping light spectrum and the final comb shape is not obvious and is related to the atomic population dynamics. We specifically address this question in subsection II B3. We nevertheless can guess intuitively that a square-shaped light spectrum with a $2\pi/T$ period generates a square-shaped comb through the optical pumping process. We now prepare this specific optical spectrum and use it for the preparation procedure.

1. Square-shaped optical spectrum with a $2\pi/T$ period

A $2\pi/T$ -periodic spectrum for the pumping light $|\tilde{\mathcal{E}}(\omega)|^2$ is produced by a pulse train in the time domain. The temporal separation T imposes the period and the pulse duration gives the total bandwidth. The fine structure of the spectrum depends on the relative pulse amplitudes.

Experimentally, the temporal shaping of the preparation pulses is realized by an acousto-optic modulator (AOM) connected to an arbitrary waveform generator (AWG 520 Tektronik). We here use the same optical setup that have been previously described [17]. This allows a complete control in amplitude and phase of the preparation pulse sequence $\mathcal{E}(t)$. We'd like to obtain a field spectrum $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$ which has a constant value among $-\Gamma$ and Γ and 0 elsewhere in the interval $[-\pi/T; \pi/T]$. In the time domain, it is a pulse train with relative amplitudes $P(k) = \text{sinc}(k\Gamma T/2)$ [k is integer, $P(k)$ can be negative].

By controlling the AWG rf amplitude and phase sent to the AOM, we create an arbitrary sequence of pulses. The nonlinear rf response of the AOM should be taken into account in order to faithfully control the field spectrum. The rf to optical intensity response is recorded and is used as a correction factor to obtain the $P(k)$ amplitudes of each pulse [for negative values of $P(k)$, the rf phase is flipped]. We truncate the series to $-30 \leq k \leq 30$ corresponding to 61 pulses. The pulse duration is 300 ns

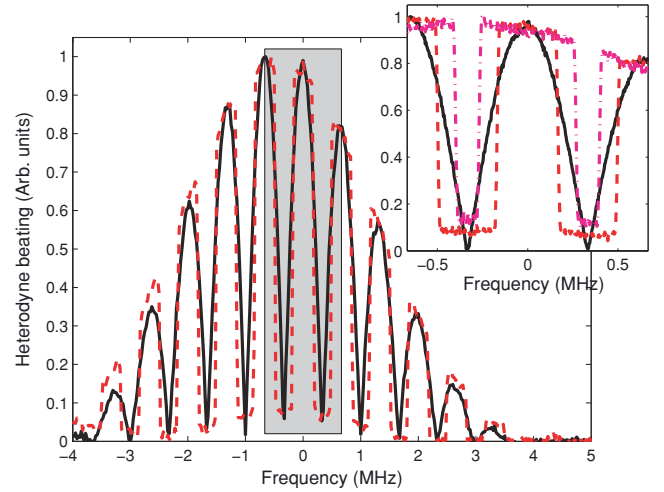


FIG. 2. (Color online) Heterodyne beating of the preparation pulse sequence for $\Gamma = \pi/(2T)$ with $1/T = 666$ kHz (red dashed line). Since the reference is monochromatic, it directly gives the field spectrum $|\tilde{\mathcal{E}}(\omega)|$. We compare it with the spectrum of a pulse pair $P(0) = P(1) = 1$ (solid black line). (Inset) Central part of the spectrum $[-1/T; 1/T]$. We add the pulse sequence corresponding to $\Gamma = \pi/(5T)$ that is also used in the experiment (magenta dashed dotted line).

adapted to the AOM bandwidth and the temporal separation is $1.5 \mu\text{s}$ ($1/T = 666$ kHz) [17]. The total duration of the sequence is $100 \mu\text{s}$. It ensures that the field spectrum as a good resolution as compared to the homogeneous linewidth (coherence lifetime $T_2 \sim 30\text{--}50 \mu\text{s}$). The convolution by the homogeneous broadening through the optical pumping process will be discussed extensively later on. We experimentally verify the field spectrum by heterodyning the pulse sequence with a shifted reference from the same laser.

In Fig. 2, we observe a good overall control of the field spectrum $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$. By applying 61 pulses, we obtain a square-shaped spectrum with a $2\pi/T$ period. The peak width is changed by modifying the pulse sequence (see inset).

The spectrum is asymmetric about the carrier frequency. This is explained by an asymmetry in the AOM frequency response. It strongly depends on the alignment of the device itself and the optical fiber placed behind. More importantly, we note an imperfect contrast in the modulated spectrum. This is especially true for its central part. Even if the different pulses have roughly the same Gaussian-like shape, one pulse relative to the other can be distorted by the previously mentioned nonlinear response of the AOM. This may explain the imperfect contrast in the optical spectrum. The potential effect of the pumping dynamics will be discussed later (see subsection II B3). We prepare four different time sequences. The first is a pulse pair (PP sequence) and is taken as reference. The three others $S_{1/2}$, $S_{1/3}$, and $S_{1/5}$ sequences have a square-shaped spectrum with different widths, respectively, $\pi/(2T)$, $\pi/(3T)$, and $\pi/(5T)$. We now experimentally evaluate their influence on the AFC efficiency.

2. Measured AFC efficiencies

We implement the protocol in 0.5% doped $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ crystal [17]. A 210-G magnetic field is applied along the [001]

crystalline axis and splits the ground and excited levels into a nuclear spin doublet by $\Delta_g = 6$ MHz and $\Delta_e = 1.3$ MHz, respectively. The influence of the magnetic field will be discussed later (Sec. III). A 210-G magnetic field corresponds to the experimental conditions that have been investigated previously for comparison purposes. The comb structure is obtained by optical pumping between these long-lived spin levels. The laser polarization is also applied along the [001] axis. The crystal is immersed in liquid helium at 2.3K. This ensures a narrow homogeneous linewidth ($\gamma \simeq 2\pi \times 5$ kHz) and then an accurate spectral tailoring.

The four previously described pulse sequences (PP, $S_{1/2}$, $S_{1/3}$, and $S_{1/5}$) represents an elementary pattern whose total duration is 100 μ s. This pattern is repeated 5000 times to accumulate the population in the shelving state with a low pumping power (weak area pulses). The resulting comb depends on the pulse sequence and the pumping power. It is probed after a 50-ms waiting time for a complete decay of the excited state population.

The independent weak probe beam is controlled by a second AOM for frequency scanning and temporal shaping. First, it is used to measure the comb shape by sweeping the AOM carrier frequency. We obtain the absorption spectrum [see Figs. 3(a) and 3(c)]. Next, a 450-ns signal pulse is sent into the medium. It is longer than the preparation pulses to ensure a good spectral overlap of the signal bandwidth and the comb. This probe pulse is absorbed and retrieved at a later time $T = 1.5$ μ s [see Fig. 3(b) and 3(d)].

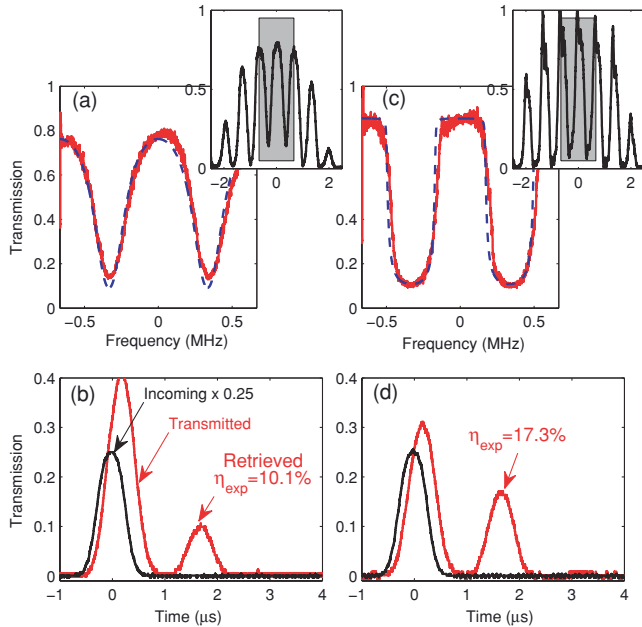


FIG. 3. (Color online) (a and c) Central part of the absorption spectrum after the PP and $S_{1/2}$ sequences, respectively. We fit the spectra by a simple optical pumping model (dashed blue line, see subsection II B 3 for details). The insets show the same spectrum on a larger bandwidth. (b) Optical AFC echo of a weak 450-ns signal pulse after the PP sequence [corresponding to (a)]. (d) Optical AFC after the $S_{1/2}$ sequence [corresponding to (d)]. The pumping power is adjusted independently for both sequences to optimize the retrieval efficiency.

We see a net gain between the PP and the $S_{1/2}$ sequence since they give an efficiency of 10.1 and 17.3%, respectively. This is expected since the two sequences generate different comb shape [see Figs. 3(a) and 3(c)]. The sharp edges of absorption spectrum approaching a square shaped structure for the $S_{1/2}$ sequence [see Fig. 3(c)] explains a gain in efficiency. There are also noticeable differences between the field spectrum and atomic comb [for example, the inset of Fig. 2 and the Fig. 3(c) can be compared]. First, the absorption spectrum is visibly smoothed out by the optical pumping dynamics. Moreover, we cannot obtain a fully contrasted comb. More precisely, the transmission should be 1 at the maximum and few percentages at the minimum limited by the sample optical depth ($\alpha_M L \sim 4-5$ in our case). The maxima and minima of the absorption spectrum strongly depend on the pumping power. The latter is chosen to optimize the retrieval efficiency for the PP and $S_{1/2}$ sequences. In order to have a good understanding of the preparation population dynamics, we vary the pumping power and record the corresponding efficiency (see Fig. 4). We decide to use the mean transmission value (central part of the absorption spectrum) as abscissa to plot the different efficiencies. It is also obtained from the model that we develop in subsection II B 3.

We expect different results for different square widths as previously discussed in subsection II A 2. We indeed see that the square width should be properly chosen to obtain the highest efficiency [Eq. (4)]. We then also use the sequences $S_{1/3}$ and $S_{1/5}$ to observe this dependency. We recognize the features derived from our analysis of the optimum comb shape (subsection II A 2): (i) a squarelike shape of the comb improves significantly the retrieval and (ii) the efficiency strongly depends on the square width of the optical spectrum.

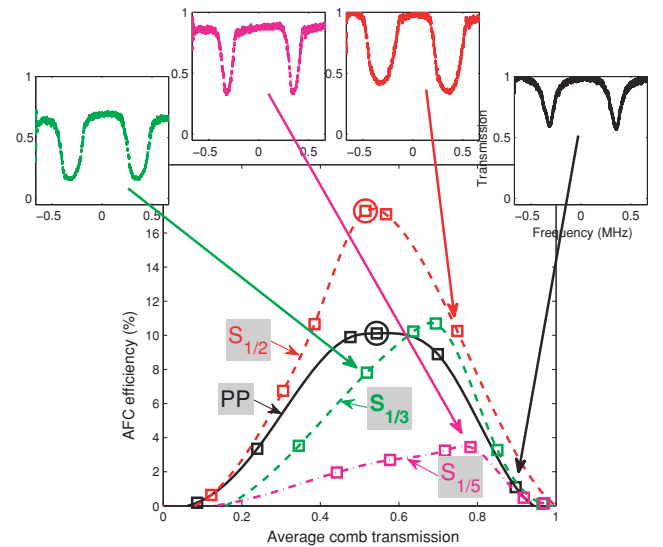


FIG. 4. (Color online) Efficiency comparison between the PP, $S_{1/2}$, $S_{1/3}$, and $S_{1/5}$ sequences. The lines connecting the measurements are used to guide the eye. The four insets show an absorption spectrum for each sequence. The corresponding measurements are indicated by arrows. The two circles represent the measured efficiencies and spectra that have been analyzed in Fig. 3.

We should be able to predict the efficiency from the atomic comb shape [Eq. (3)]. This procedure demands a fine knowledge of the absorption spectrum, i.e., the average value α_0 and the modulation α_{-1} . We measure both coefficients by recording the transmission spectrum. The results of Eq. (3) can then be compared to the independently measured efficiencies. This approach is unfortunately unsuccessful to fit the data set presented in Fig. 4. To explain this discordance, we see two reasons. The first one is technical. It is not easy to accurately measure a large optical thickness. In that case, a weak transmission can be biased by experimental artifacts [17]. This may produce a large systematic error in the measured absorption (logarithm of the transmission). The second one is fundamental. We implicitly assume in subsection II A1 that the atomic comb is uniform along the crystal length. This allows a complete analytical calculation. In the contrary case, α_0 and α_{-1} [in Eqs. (2)] would be z dependent. We can question this assumption. The comb is produced by a specific pulse preparation sequence. During the propagation, this sequence can be distorted by the atomic comb under construction. As a consequence, the resulting comb would not be uniform along the crystal. In order to analyze the impact of these two effects and have a better physical understanding of the AFC limitation, we develop a simple pumping model to discuss the previous data.

3. Discussion: optical pumping dynamics

The optical pumping dynamics are a key element to have at least a qualitative understanding of the current limitations. We here briefly develop a model to account for the frequency selective hole-burning preparation.

The rate equation limit of the Block-Maxwell equations have been successful in predicting the hole shape in high-resolution spectroscopy with monochromatic pumping [21]. This approach is perfectly valid in our case since each sequence pattern satisfies the weak area approximation. In that case, each sequence (duration $T_p = 100 \mu\text{s}$) induces an incremental small population change $w \rightarrow w + \delta w$ that is given by $\delta w = \frac{1}{2\pi} \mathcal{L}(\Delta) \otimes |\tilde{\mathcal{E}}(\Delta)|^2 w$. The optical spectrum $|\tilde{\mathcal{E}}(\Delta)|^2$ ($\tilde{\mathcal{E}}$ is the Fourier transform of the pulse sequence) is convoluted by the homogeneous line shape $\mathcal{L}(\Delta) = \frac{\gamma}{\gamma^2 + \Delta^2}$. The population difference between the excited and the ground state is $w = n_1 - n_2$.

Since we repeat each sequence to accumulate the population in a shelving state, we model the preparation by a continuous frequency selective pumping rate $R(\Delta) = \frac{\delta w}{w T_p}$

$$R(\Delta) = \frac{1}{2\pi T_p} \mathcal{L}(\Delta) \otimes |\tilde{\mathcal{E}}(\Delta)|^2. \quad (7)$$

The hole-burning process is due to at least one shelving state. In our case, even if most of the population ends up in the long-lived Zeeman state, the pumping dynamics also involve the 3F_4 bottleneck state (lifetime 10 ms). To simplify the problem, we model our system as an equivalent three-level system (see Fig. 5).

The rate equations for the populations n_1 , n_2 , and n_3 (see Fig. 5) are then

$$\partial_t n_1(\Delta) = \frac{1}{2} R(\Delta)(n_2 - n_1) + \frac{r}{T_1} n_2 - \frac{1}{T_Z}(n_1 - n_3)$$

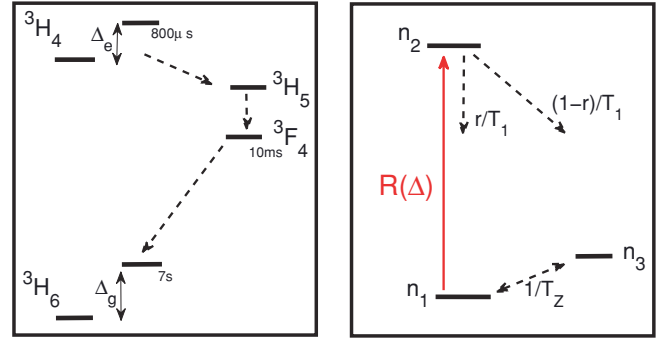


FIG. 5. (Color online) (Left) Thulium level structure. (Right) Equivalent three-level system for optical pumping model.

$$\partial_t n_2(\Delta) = \frac{1}{2} R(\Delta)(n_1 - n_2) - \frac{1}{T_1} n_2 \quad (8)$$

$$\partial_t n_3(\Delta) = \frac{1-r}{T_1} n_2 - \frac{1}{T_Z}(n_3 - n_1).$$

At the end of the pumping sequence, the populations reach a steady state n_1^S , n_2^S , and n_3^S . Before sending the signal, we wait for a complete decay from the excited state. The populations should now be $n_1^P = n_1^S + r n_2^S$, $n_2^P = 0$, and $n_3^P = n_3^S + (1-r) n_2^S$. The absorption spectrum on the 1-2 transition is given by

$$\alpha(\Delta) = \alpha_M n_1^P(\Delta) = \alpha_M \frac{(1+r)R(\Delta)T_1 + 2}{R(\Delta)T_1/\epsilon + 4}, \quad (9)$$

where $\epsilon = \frac{1}{(1-r)T_Z/T_1 + 3}$. The parameter ϵ should be much smaller than 1. The population then accumulates in level 3 because $(1-r)/T_1 \gg 1/T_Z$.

This formula connects the optical spectrum and the absorption profile. To obtain an analytical solution for the AFC efficiency, we have to assume that the optical spectrum is uniform over the entire length of the medium. In that case only, the atomic comb is uniform as well. That is an underlying assumption of the efficiency formula [Eq. (3)]. This supposition will be discussed later on.

Such a model allows us first to predict the absorption spectrum for any predefined pumping sequence. We here focus on the PP and $S_{1/2}$ sequences which yield the highest efficiencies. The PP sequence produces a cosine-modulated spectrum. In our case, since $1/\gamma \gg T$, we obtain for the pumping rate at the center of the spectrum [Eq. (7)]: $R(\Delta) \propto 1 + \exp(\gamma T) \cos(\Delta T)$. By using the formula (9), we fit the absorption spectra produced by the PP sequence with different pumping powers. We see a typical comparison between our model [dashed blue line in Fig. 3(a)] and the experiment.

The $S_{1/2}$ sequence has been designed on purpose to generate a square-shaped optical spectrum. The convolution by a Lorentzian smooths out the edges and the pumping rate now reads as $R(\Delta) \propto 2 \sum_p \arctan[\frac{2\pi(p+1/2)-\Delta T}{\gamma T}]$. We also fit the experimental absorption spectrum in Fig. 3(c). The agreement is satisfactory for both sequences. Our model is able to properly predict the observed transmission spectrum.

We now interpret the connection between the heterodyne beat and the absorption spectrum. We have seen that the $S_{1/2}$ sequence induces a residual background reducing the contrast

of the modulated spectrum (see Fig. 2). Our model assumes that this residual background is absent (the minimum of the field is zero) but properly reproduces the observed absorption spectrum. We conclude that this background does not have a major impact. It seems that the reduction of the comb contrast through the optical pumping dynamics is mainly due to the homogeneous linewidth (convolution effect). This effect is more clearly observed in Fig. 3(c), where the minimum transmission becomes rounded by the convolution effect. This limitation is fundamental and not technical.

The comparison with the observed absorption spectrum validates our approach of modeling the pumping process. Combining Eqs. (9) and (3), we are able to predict the observed efficiency (in Fig. 4) for the PP and $S_{1/2}$ sequences. As we do not independently measure the pumping power which gives the amplitude of $\tilde{\mathcal{E}}$, we also use the mean transmission value (central part of the absorption spectrum). The average transmission is indeed predicted by our model [Eq. (9)] and is used in abscissa. We then plot the efficiency for different pumping power (see Fig. 6). The variable pumping power parametrizes the curve. The only remaining adjusting parameter is the initial optical depth $\alpha_M L$.

The initial absorption is typically $\alpha_M L \sim 4$ –5. It is not easy to accurately measure a large optical depth. This is one of our motivation to develop a model for the optical pumping dynamics. To illustrate this dependency of the expected efficiency with $\alpha_M L$, we consider a larger range. We plot the expected efficiencies for $\alpha_M L = 3$ and $\alpha_M L = 6$ (solid black lines and red dashed lines in Figs. 6(a) and 6(b) for the PP and $S_{1/2}$ sequences, respectively).

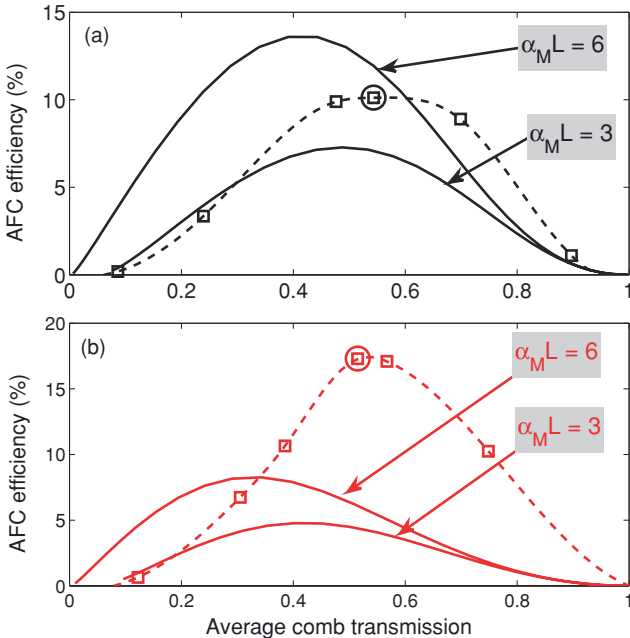


FIG. 6. (Color online) Comparison between the measured (same as in Fig. 4) and the predicted efficiencies for the PP (a) and $S_{1/2}$ sequences (b). For each sequence, we plot the prediction of our pumping model with $\alpha_M L = 3$ and $\alpha_M L = 6$ for the PP (a, solid black lines) and $S_{1/2}$ sequences (b, solid red lines).

The general qualitative behavior is properly reproduced. Without pumping light, the mean transmission is $e^{-\alpha_M L}$ and the efficiency zero (the comb is absent). At very high pumping power, the medium is completely transparent and there is no AFC echo either. The power broadening effect is indeed smoothing out the periodic modulation of the pumping spectrum and uniformly bleaching the sample. Quantitatively we observe a major discrepancy between the curves. We cannot reproduce the position of the maximum even if we consider optical depths ($\alpha_M L = 3$ and 6) which are largely surrounding the experimental value. This may sound surprising since we fit accurately the measured transmission spectrum [see Fig. 3(a) and 3(c)]. To explain this discordance, we go back to the conclusion of subsection II B2.

A systematic error on the measurement of the absorption may still explain the discrepancy between the measured spectrum and the expected efficiency. Our optical pumping model seems to describe properly the generation of the atomic comb. Nevertheless we cannot completely discard any experimental artefact leading to underestimate the optical depth.

We also expect that the atomic comb is actually nonuniform. If the atomic comb were uniform over the entire length of the medium (assumption in subsection II A1), we should be able to fit both the measured transmission spectrum and experimental efficiencies. A nonuniform comb would certainly modify the propagation of the AFC echo [in Eqs. (2), α_0 and α_{-1} would be z dependent] and change the final efficiency. But it sounds possible to fit properly the finally observed transmission spectrum. It indeed results from an average absorption spectrum over the propagation but could be fitted by an equivalent uniform profile. In that sense, the AFC efficiency would be more sensitive to the uniformity of the comb than the transmission spectrum. The propagation of the pumping spectrum through the sample produces certainly a nonuniform atomic comb. To account for this propagation effect, one can include the back-action of the absorption spectrum (propagation of the pumping light). This leads to two coupled equations that can be solved numerically. This work is currently under investigation in our group.

III. INFLUENCE OF THE MAGNETIC FIELD

The previous analysis is based on an optical pumping model. We simplify the level structure (see Fig. 5) to obtain an equivalent structure and stay close to the physical intuition. If we neglect the influence of the 3F_4 bottleneck state, such a simplification seems to be appropriate as soon as the ground and excited state Zeeman splittings (Δ_g and Δ_e) are much larger than the comb bandwidth. The shelving state is then out of resonance. Spectral hole-burning (SHB) is an alternative way to consider the pumping dynamics. SHB has been widely used as a fine spectroscopic tool with monochromatic laser especially for Zeeman interaction and superhyperfine interaction [25]. Under magnetic field, the spectrum is usually enriched by side structures as holes or antiholes. Following this analogy, the preparation of a comb by optical pumping should also lead to side combs and anticombs. If these structures were completely out of resonance, one could indeed treat the preparation as a population accumulation in a single

far-off-resonance shelving state. For a weak magnetic field or when a large bandwidth is demanded, the side structures overlap the main comb. They can be caused by the Zeeman (hyperfine) or the superhyperfine effect. We specifically study these situations here.

A. Zeeman effect

The magnetic field is applied along the [001] crystalline axis. In that case, all the excited sites are equivalent. The Zeeman splittings have been measured previously: $\delta_g = 28$ kHz/G and $\delta_e = 6.0$ kHz/G, respectively, for the ground and the excited states [26]. The experimental 210G magnetic field produces shifts of $\Delta_g = 5.9$ MHz and $\Delta_e = 1.3$ MHz. The AFC bandwidth is typically 4 MHz limited by the 300-ns preparation pulse duration [see inset of Fig. 3(c), for example]. Even if the ground-state splitting is larger than the bandwidth, this is not the case for the excited state. This modifies the pumping dynamics. In SHB spectroscopy a monochromatic laser creates a hole at the central frequency. In the present situation with four levels, we observe also two side holes positioned at $\pm\Delta_e$ and four antiholes at $\pm\Delta_g$ and $\pm(\Delta_g - \Delta_e)$. Our preparation procedure is then creating a comb centered at the central frequency, two side combs at $\pm\Delta_e$ and four anticombs at $\pm\Delta_g$ and $\pm(\Delta_g - \Delta_e)$. Since $\Delta_g \gg \Delta_e$, the influence of the anticombs should be negligible for a 210G magnetic field. Nevertheless we cannot neglect the two side combs at $\pm\Delta_e = \pm 1.3$ MHz as it is smaller than the bandwidth. To minimize the interplay between these structures, we have intentionally chosen the magnetic field in order to have $\Delta_e \simeq 2/T$. This *a priori* assumption deserves further study. To question it, we use the PP sequence. We then simply measure the optical AFC efficiency as a function of the applied magnetic field (see Fig. 7). We observe a strong influence of the magnetic field on the efficiency. We analyze this figure as follows.

At low magnetic field (<50 G), the efficiency is zero. This is directly due to the population lifetime in the Zeeman state. We cannot observe long-lived holes by SHB spectroscopy. The preparation is then inefficient. We observe an echo only if the population lifetime is significant (>100 G in our case).

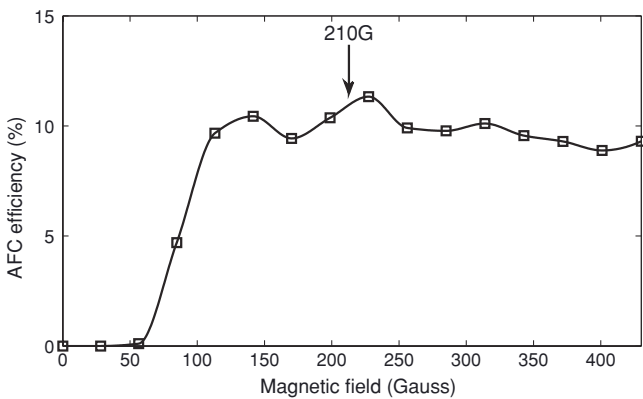


FIG. 7. AFC efficiency as a function of the magnetic field (the solid line is used to guide the eye). The error bars are smaller than the marker size. The 210G value that has been used for the previous experiments is indicated by an arrow (see text for details).

The range 100–140 G is very singular since Δ_g and Δ_e are both smaller than the bandwidth ($\simeq 4$ MHz). The situation is complex because the main comb, the side combs, and anticombs overlap each other. But nevertheless it leads to a high efficiency. If the side combs are shifted by the main comb spacing ($\Delta_e = p/T$, p is integer), and the anticombs by half of it [$\Delta_g = (p' + 1/2)/T$, p' is integer], the resulting profile is very contrasted. In other words, the preparation spectrum is optically pumping and depumping at the same time within the four-level system. The two mechanisms act accordingly to increase the comb contrast. We cannot satisfy all the conditions experimentally when Δ_g and Δ_e are kept smaller than the bandwidth. A 130-G magnetic field seems to represent a good trade-off between these conditions: $\Delta_e = 1.2/T \sim 1/T$ and $\Delta_g = 5.5/T \sim (5 + 1/2)/T$. We indeed observe a local maximum of the efficiency for this value (see Fig. 7). It supports our qualitative analysis even if the combs and anticombs overlap should modify the final comb shape and should also change the retrieval efficiency.

In the range 140–430 G, only Δ_e is smaller than the bandwidth. An overlap of the side combs with the main one is possible. The matching is realized for 220 G ($\Delta_e = 2/T$) and 330 G ($\Delta_e = 3/T$). We also observe a local maximum of the efficiency at 220 G close to the value chosen for the previous experiments. For higher values of the magnetic field, the overlap is decreasing and the efficiency constant.

Our study is particularly relevant for the optical AFC. We clearly see that high efficiencies are obtained when the four levels are all contained in the interaction bandwidth. Such a configuration is less suitable for the Raman AFC. First, a spin doublet in the ground state is not sufficient to provide one shelving state plus two spin states (long coherence lifetime). Next, the Raman transfer demands to independently address the different transitions. An overlap may not be appropriate especially for the ground state where the coherences are stored. A partial overlap in the excited state may be tolerated for the Raman AFC but this possibility has not been investigated so far.

B. Superhyperfine effect

The superhyperfine effect corresponds to the next order of magnetic-field-induced interaction. It is produced by the surrounding nuclear spins on the dopant rare earth [27]. It is usually studied with electron paramagnetic resonance or NMR spectroscopy. An optical detection makes the observation easier for luminescent centers [25], p. 72]. SHB spectroscopy can also be used to study this ion-ligand interaction [28]. The superhyperfine effect is then indicated by the presence of adjacent antiholes on the broader hyperfine or Zeeman structure. We perform SHB measurements for a varying magnetic field along the [001] crystalline axis (see Fig. 8).

We initially observe side holes at $\pm\Delta_e$ due to the Zeeman interaction (see Fig. 8). The previously mentioned antiholes at $\pm\Delta_g$ and $\pm(\Delta_g - \Delta_e)$ are present but rapidly out of the spectrum range and small because of the large optical depth. The strongest surrounding nuclear moments are the aluminium ones. In that case, the population distribution is usually governed by $\Delta m_I = \pm 1$ spin flips [29]. Our result $\delta_S = 1.05 \pm 1\%$ kHz/G is consistent with the Al gyromagnetic

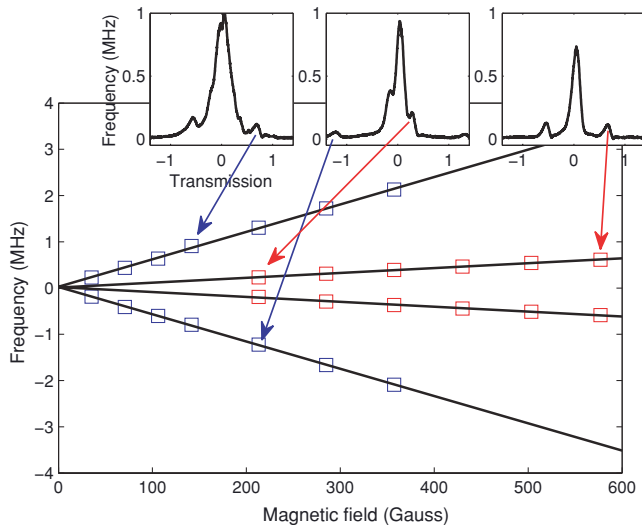


FIG. 8. (Color online) Spectral hole-burning spectroscopy of the Zeeman excited state splitting (blue markers) and the superhyperfine interaction (red markers). We plot the side holes position as a function of the magnetic field. (Insets) Examples of the hole-burning spectra (for 110, 210, and 580 G from left to right). We confirm previous measurements for the excited state Zeeman shift $\delta_e = 5.91 \pm 1\%$ kHz/G [26]. For large magnetic fields (>210 G), we see adjacent side holes that we attribute to the superhyperfine interaction with Al nuclei. The splitting is $\delta_s = 1.05 \pm 1\%$ kHz/G.

ratio 1.11 kHz/G. One can be surprised by the intensity of the superhyperfine effect (hole depth) which is comparable to the Zeeman one. The Al ions occupy different sites in the crystal leading to different coupling strengths. Since we do not observe any quadrupole structure, we cannot distinguish them [30]. Such an analysis demands an accurate spectroscopic study.

The superhyperfine interaction modifies the AFC preparation dynamics in generating side structures, as the Zeeman effect does at lower magnetic field. At moderate magnetic field, the shift is smaller than the AFC peak and then broadens it. This reduces the contrast of the comb and then the efficiency. In our case, the peak width is typically 200 kHz corresponding to a 180-G superhyperfine shift. For a larger magnetic field, side structures should clearly appear, even if, because of the high number of Zeeman and superhyperfine side structures,

the matching between them is relatively unlikely for a given magnetic field.

The effect should be stronger for Kramers ions in high spin concentration matrices. Its influence on the AFC storage has already been observed [16]. A systemic material study should be pursued especially because a high bandwidth and then a large magnetic field is desired for quantum repeater applications.

IV. CONCLUSION

We carefully study the efficiency of the optical AFC protocol. We show that the preparation procedure can be significantly improved. The most efficient atomic comb has a square shape whose width should be properly adjusted for a given optical depth. This requires an accurate control of preparation pulse sequence in amplitude and phase. We implement this technique in a Tm^{3+} :YAG crystal and increase the efficiency from 10.1 to 17.3%. The experimental results are consistent with our expectations. We develop a simple rate equation model to describe the optical pumping dynamics. Even if it properly reproduces the comb spectrum, we are unable to predict *ab initio* the observed efficiency. This discrepancy encourages us to consider the propagation of the preparation pulses inside the medium and the back-action of the prepared atomic comb. This route is under investigation in our group.

We also study the effect of the magnetic field. This is relevant in the perspective of high bandwidth application. The Zeeman and the superhyperfine interactions have a strong influence on the optical AFC protocol. They can be beneficial or detrimental. We clarify these conditions.

Our work should be placed in the context of quantum storage where a Raman conversion has to be implemented (Raman AFC). Our analysis mainly focuses on the preparation stage of optical AFC but can be extended to understand the efficiency of the complete protocol.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank C. Thiel and Y. C. Sun for their analysis of the superhyperfine effect. We thank D. Comparat and A. Fioretti for technical assistance on magnetic coils design and realization.

- [1] K. Hammerer, A. S. Sørensen, and E. S. Polzik, Rev. Mod. Phys. (to be published), e-print arXiv:0807.3358.
- [2] M. Mitsunaga and N. Uesugi, Opt. Lett. **15**, 195 (1990).
- [3] H. Lin, T. Wang, and T. Mossberg, Opt. Lett. **20**, 1658 (1995).
- [4] V. Crozatier, G. Gorju, J.-L. L. Gouët, F. Bretenaker, and I. Lorgère, Opt. Lett. **31**, 3264 (2006).
- [5] G. Gorju, A. Chauve, V. Crozatier, I. Lorgère, J.-L. L. Gouët, and F. Bretenaker, J. Opt. Soc. Am. B **24**, 457 (2007).
- [6] J. Nunn, K. Reim, K. C. Lee, V. O. Lorenz, B. J. Sussman, I. A. Walmsley, and D. Jaksch, Phys. Rev. Lett. **101**, 260502 (2008).

- [7] N. Carlson, L. Rothberg, A. Yodh, W. Babbitt, T. Mossberg *et al.*, Opt. Lett. **8**, 483 (1983).
- [8] J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, C. Simon, and T. Chanelière, Phys. Rev. A **79**, 053851 (2009).
- [9] M. Nilsson and S. Kröll, Opt. Commun. **247**, 393 (2005).
- [10] A. L. Alexander, J. J. Longdell, M. J. Sellars, and N. B. Manson, Phys. Rev. Lett. **96**, 043602 (2006).
- [11] B. Kraus, W. Tittel, N. Gisin, M. Nilsson, S. Kröll, and J. Cirac, Phys. Rev. A **73**, 020302(R) (2006).
- [12] M. Afzelius, C. Simon, H. de Riedmatten, and N. Gisin, Phys. Rev. A **79**, 052329 (2009).

- [13] G. Hetet, J. Longdell, A. Alexander, P. Lam, and M. Sellars, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 023601 (2008).
- [14] W. Tittel, M. Afzelius, R. L. Cone, T. Chanelière, S. Kröll, S. A. Moiseev, and M. Sellars, *Laser & Photonics Reviews* **1**, 1863 (2009).
- [15] B. Lauritzen, J. Minár, H. de Riedmatten, M. Afzelius, N. Sangouard, C. Simon, and N. Gisin, *Phys. Rev. Lett.* (to be published), e-print arXiv:0908.2348.
- [16] H. de Riedmatten, M. Afzelius, M. Staudt, C. Simon, and N. Gisin, *Nature* **456**, 773 (2008).
- [17] T. Chanelière, J. Ruggiero, M. Bonarota, M. Afzelius, and J. L. Le Gouët, *New J. Phys.* **12**, 023025 (2010).
- [18] M. Afzelius, I. Usmani, A. Amari, B. Lauritzen, A. Walther, C. Simon, N. Sangouard, J. Minar, H. de Riedmatten, N. Gisin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 040503 (2010).
- [19] L. Rippe, M. Nilsson, S. Kröll, R. Klieber, and D. Suter, *Phys. Rev. A* **71**, 062328 (2005).
- [20] H. Sönajalg and P. Saari, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 372 (1994).
- [21] L. Allen and J. Eberly, *Optical Resonance and Two-Level Atoms* (Courier Dover, N. Chemsford, 1987).
- [22] M. Crisp, *Phys. Rev. A* **1**, 1604 (1970).
- [23] V. Crozatier, G. Gorju, F. Bretenaker, J.-L. L. Gouët, I. Lorgeté, and E. Baldit, *Opt. Lett.* **30**, 1288 (2005).
- [24] C. S. Cornish, W. R. Babbitt, and L. Tsang, *Opt. Lett.* **25**, 1276 (2000).
- [25] G. Liu and B. Jacquier, *Spectroscopic Properties of Rare Earths in Optical Materials* (Springer-Verlag, Berlin, 2005).
- [26] A. Louchet, J. S. Habib, V. Crozatier, I. Lorgeté, F. Goldfarb, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and P. Goldner, *Phys. Rev. B* **75**, 035131 (2007).
- [27] R. M. Macfarlane, R. M. Shelby, and D. P. Burum, *Opt. Lett.* **6**, 593 (1981).
- [28] G. K. Liu, J. Huang, R. L. Cone, and B. Jacquier, *Phys. Rev. B* **38**, 11061 (1988).
- [29] A. Kaplyanskii and R. Macfarlane, *Spectroscopy of Solids Containing Rare Earth Ions* (Elsevier Science Ltd., Amsterdam, 1987).
- [30] C. Thiel and Y. Sun (private communication, 2009).

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

T. Chanelière, J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, W. Tittel, J.-H. Mun, A. Jouini, A. Yoshikawa, G. Boulon, Y. L. Du, P. Goldner, F. Beaudoux, J. Vincent, E. Antic-Fidancev, 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) [Chanelière2008].

Tm³⁺:Y₂O₃ 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, Tm³⁺:Y₂O₃ 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](https://doi.org/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 Tm³⁺:Y₂O₃ can fulfill these two criteria. We would like to emphasize that the simple energy-level structure of Tm³⁺ 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 Tm³⁺ 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

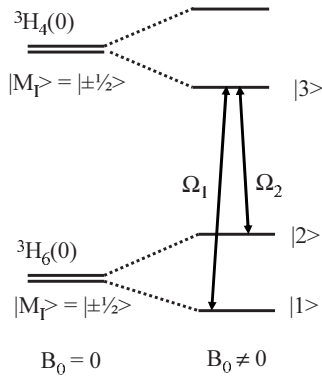


FIG. 1. Three-level Λ system in the case of Tm^{3+} ions between three hyperfine levels of the first crystal-field states of the $^3\text{H}_6$ and $^3\text{H}_4$ multiplets. The external magnetic field B_0 lifts the nuclear-spin degeneracy and can induce different M_I mixing in the ground and excited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

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

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. $\mathbf{Id}$ 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 $^{2S+1}L_J$ 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

$\Lambda_{\alpha\beta}$ 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 Tm³⁺ ions in Y₂O₃ 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+1} L _J	Energy levels (cm ⁻¹)	
			Expt.	Calc.
E^0	17 785	$^3\text{H}_6$	0	0
E^1	6 836		31	35.1
E^2	33.2		89	94.2
E^3	651		219	216.1
α	6.5		230	230.1
β	-659		340	354.1
γ	750		382	393
ζ_{4f}	2 612.6		436	434.1
B_0^2	-192.6		488	479.6
B_0^4	-1 048.5			647.6
B_0^6	444.6	$^3\text{H}_4$	692	684.1
B_2^2	-516.9		788	783.8
B_2^4	-1073.5		797	790.6
B_4^4	697			
B_2^6	12.5			
B_4^6	460		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

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

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_0^4 , B_0^6 , B_2^2 , B_2^4 , B_2^6 , B_4^4 , B_4^6 , 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 3H_6 and 3H_4 multiplets.

Parameter	Crystal-field level	
	$^3H_6(0)$	$^3H_4(0)$
g_J	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 3H_6 and 3H_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 $^3H_6(0)$ and $^3H_4(0)$ states. Because the off-diagonal term γ_{xy} is different between the $^3H_6(0)$ and $^3H_4(0)$ 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 $^3H_6(0) \rightarrow ^3H_4(0)$ transition—as well as the one of the permanent dipole in the ground $^3H_6(0)$ and excited $^3H_4(0)$ 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

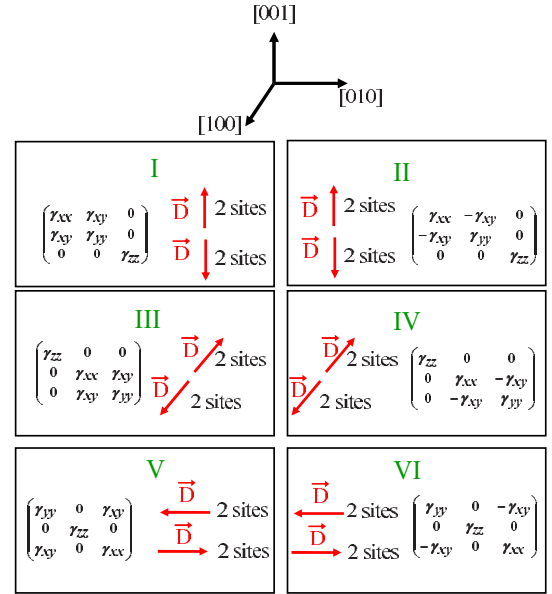


FIG. 2. (Color online) Representation of the six (I–VI) different magnetic nonequivalent classes in Y_2O_3 . [100], [010], and [001] are the crystallographic directions. Associated with each class is the matrix representation of the pseudonuclear tensor γ . We also display the electric dipole moment $\vec{D}$ 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 $\Sigma_{M_J} c_{M_J} |^{2S+1}L_J, 2M_J\rangle$ or $\Sigma_{M_J} c_{M_J} |^{2S+1}L_J, 2M_J+1\rangle$ corresponding to two different irreducible representations can be obtained. The crystal-field calculations give the same type of wave functions for the $^3H_6(0)$ and $^3H_4(0)$ states of the form $\Sigma_{M_J} c_{M_J} |^{2S+1}L_J, 2M_J\rangle$. 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 $^3H_6(0) \rightarrow ^3H_4(0)$ 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 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 $^3H_6(0) \rightarrow ^3H_4(0)$ 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-

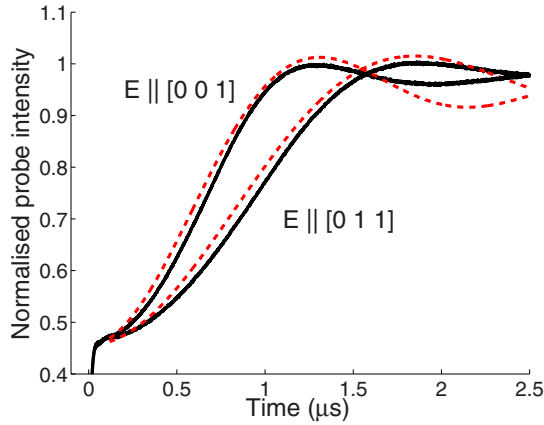


FIG. 3. (Color online) Optical nutation for two different orientations of the polarization: [001] and [011]. The extra damping of the Bessel-type oscillation could be explained by a short dephasing time for this specific temperature (around 4 μ s at 3 K—see Sec. V for details).

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 Tm³⁺:Y₂O₃ 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 Y₂O₃ (>99.99%) and Tm₂O₃ (99.99%). A single-crystal rod was used as a seed. The growth atmosphere is a mixture of Ar+3%H₂. 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 ³H₆(0) to ³H₄(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 μ s at 3 K and 9 μ s 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

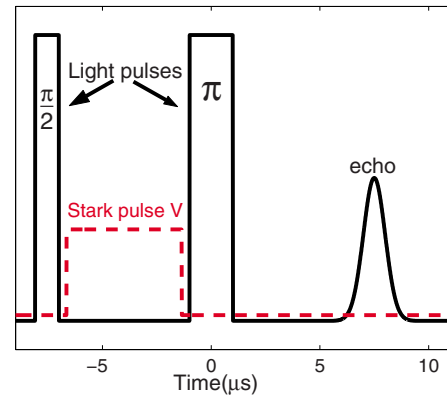


FIG. 4. (Color online) Stark-modulated photon echo. An electric-field pulse in between the optical pulses of a two-pulse photon echo is applied.

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-

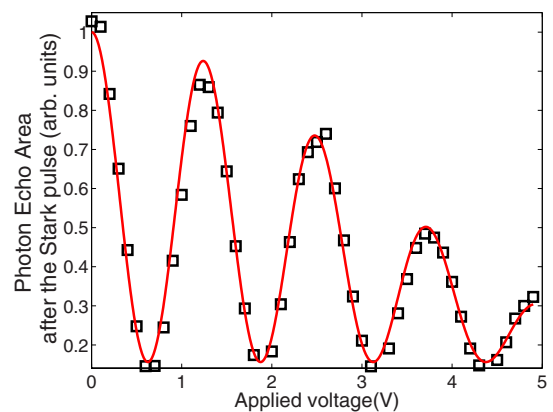


FIG. 5. (Color online) Stark-modulated photon echo as function of the electric-field voltage. The electric field is applied along one crystal axis (defined as [001]); its duration is kept constant at 5.3 μs . We vary the voltage applied on the electrodes and measure the area of the emitted echo. The 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-shape 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 Tm³⁺:Y₂O₃ 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 $^3H_6(0) \rightarrow ^3H_4(0)$ 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 μ s at 3 K and 9 μ s 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 Tm³⁺:YAG, a fact previously considered as a good reason to reject Tm³⁺:Y₂O₃ 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. Lorgère, 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. Chaneleire, F. Goldfarb, I. Lorgère, 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).

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

J. Ruggiero, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët. Coherent response to optical excitation in a strongly absorbing rare-earth ion-doped crystal. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27(1), 32–37 (2010) [Ruggiero2010].

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 $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ 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 $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. 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 $\text{Pr}^{3+}:\text{YSO}$. 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 $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ 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:

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

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

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

where:

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

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 $v(\omega_{ab}; z, t)$:

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

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

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.

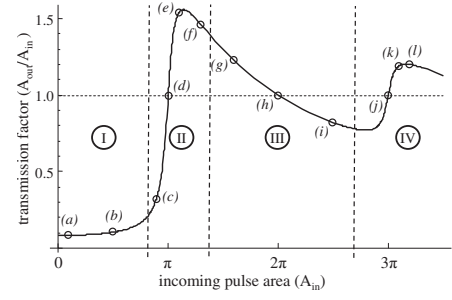


Fig. 1. Area theorem: pulse area transmission factor $A_{\text{out}}/A_{\text{in}}$ as a function of the incoming pulse area A_{in} . Labels (a) to (l) refer to the different input-area conditions considered in Fig. 2.

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-

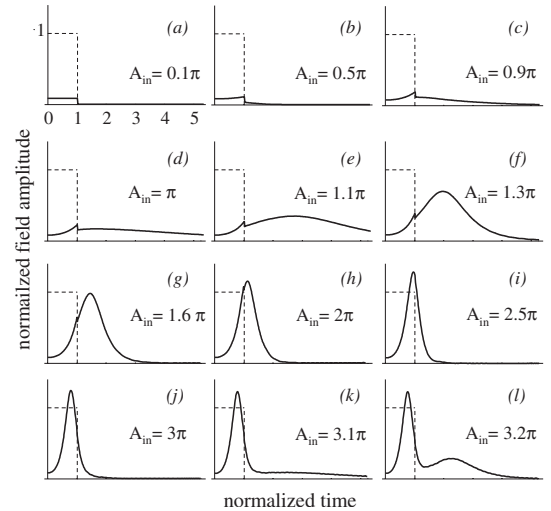


Fig. 2. Numerical solution of the MB equation. The incoming rectangular pulse (dotted line) propagates through an $\alpha L = 5$ sample. The temporal profile of the pulse at the output (solid line) is displayed for different values of the input area. Time and outgoing pulse amplitude are normalized to 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. $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ 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 $w_0 \approx 25 \mu\text{m}$. 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

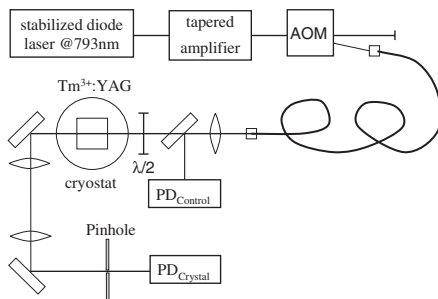


Fig. 3. Experimental setup.

select the signal emerging from the center of the illuminated spot. The sample is imaged on the $50 \mu\text{m}$ 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 $7 \mu\text{s}$, which is significantly smaller than the atomic coherence lifetime of $\approx 50 \mu\text{s}$.

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-

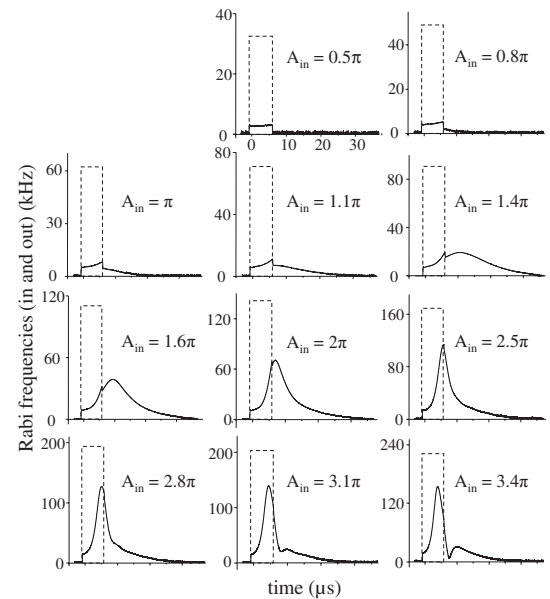


Fig. 4. Experimental profile of the transmitted pulse amplitude (solid line). Input area (A_{in}) ranges from 0.5π to 3.4π . Input pulses (dotted line) are rectangular with $7 \mu\text{s}$ duration.

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

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

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 $1.1\pi e^{-r^2/w_0^2}$. 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

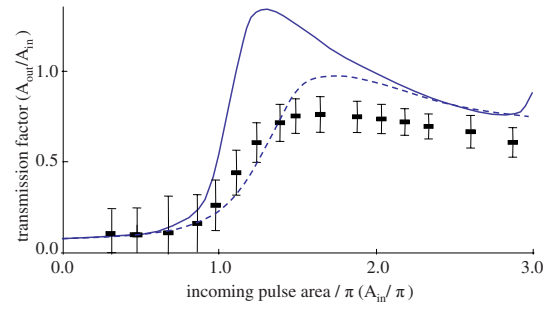


Fig. 5. (Color online) Pulse area transmission factor $A_{\text{out}}/A_{\text{in}}$ as a function of the incoming pulse area A_{in} . Input pulses are rectangular with $7 \mu\text{s}$ duration. Theory accounts for a finite coherence lifetime of $50 \mu\text{s}$ (solid line) or $10 \mu\text{s}$ (dashed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

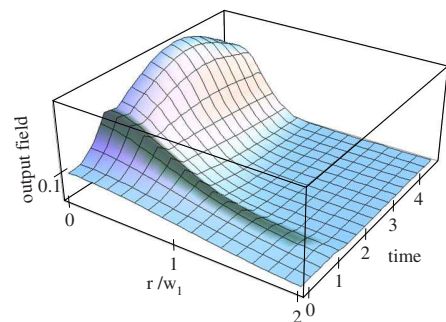


Fig. 6. (Color online) Time evolution of the radial field distribution at the crystal output. The incoming rectangular pulse with unit time duration exhibits a radial Gaussian profile with waist w_1 . The field area is set equal to 1.1π on the beam axis. The pulse reaches the crystal at time 0. Within 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. Piket-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).

Huitième partie

Curriculum vitae

Curriculum vitæ

CHANELIÈRE Thierry

CHANELIÈRE Thierry
Laboratoire Aimé Cotton
Campus d'Orsay, Bât. 505
91405 ORSAY Cedex
FRANCE

bureau C13 - (33) 1 69 35 21 41
lab E03 - (33) 1 69 35 21 12
Fax : (33) 1 69 41 01 56
e-mail : thierry.chaneliere@lac.u-psud.fr
<http://www.lac.u-psud.fr/>

1 Informations personnelles

Nationalité : française
Date de naissance : 5 juillet 1976 - Tarare (69), France
État civil : marié, un enfant
Langues : français (langue maternelle), anglais, allemand (notions)

2 Études suivies

- **2001-2004** : Thèse, Université de Nice - Sophia-Antipolis, 06103 Nice - France
- **2000-2001** : D.E.A Lasers et matière, Université Paris XI, 91405 Orsay - France
- **1997-2000** : Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau - France

3 Activités exercées

- **2006 - 2012** - Chargé de recherche CNRS :
Laboratoire Aimé Cotton, Orsay - France
Utilisation des cristaux dopés aux ions de terre-rare pour le traitement quantique et classique de l'information
- **2004 - 2006** - Post-doctorat (groupe : A. Kuzmich) :
Georgia Institute of Technology, Atlanta GA - USA

Utilisation d'ensembles atomiques pour l'optique quantique.

- **2001 - 2004** - Thèse (directeur : R. Kaiser) :
Institut Non Linéaire de Nice, Valbonne - France
Diffusion multiple cohérente avec atomes froids de strontium : Effet de la saturation sur la rétrodiffusion cohérente - Piège magnéto-optique sur raie étroite.
- **2001 - 2004** - Monitorat :
Université de Nice - Sophia-Antipolis, Nice - France
- **2000 et 2001** - Stage de troisième année puis stage de DEA (responsable : J.L. Le Gouët) :
Laboratoire Aimé Cotton, Orsay - France
Mise en forme d'impulsions brèves par hole-burning spectral

4 Séminaires - Colloques

- Projet STOMAQS : Utilisation de cristaux dopés avec des ions de terre rare comme mémoire quantique pour la lumière - 6/2/12
Journée d'inauguration du DIM Des atomes froids aux nanosciences, Paris
- Quantum memory for light in rare-earth doped crystals - 7/12/2011
Séminaire SPEC, Saclay
- Photon echo for quantum memory applications - 17/5/2011
Quantum Efficiency Seminar, Freiburg
- Adiabatic passages and rephasing for quantum memory protocols - 12-13/5/2011
Quantum Information Processing in Rare-earth doped Solids 2011, Barcelona
- Quantum storage in rare-earth doped solids - 7/4/2011
CQT Talk, Singapour
- Quantum storage in atomic samples - 24/2/2011
QuPa Meeting, Institut Henri Poincaré, Paris
- Light storage in Tm :YAG - 3/6/2009
Australian National University, Canberra.
- Possibilités offertes par les cristaux dopés terre-rare pour le stockage quantique : l'exemple du Tm - 25/04/2008
Séminaire INLN, Institut Non-Linéaire de Nice, Sophia-Antipolis.
- Quantum storage investigation in rare-earth ion doped crystals :
The example of Tm - 22/02/2008
IQIS Seminar, University of Calgary, Calgary.
- Quantum storage investigation in rare-earth ion doped crystals :

- The example of Tm - 18/01/2008
 AMO Colloquium, School of physics, Georgia Tech, Atlanta.
- Mémoire quantique dans des ensembles atomiques Réalisations et perspectives - 15-16/02/2007
 Colloque Alain BOUYSSY (Jeunes Chercheurs), Orsay.
 - Mémoire quantique avec des ensembles atomiques - 02/11/2006
 Réunion IRCOQ, Institut d'Optique, Palaiseau
 - Utilisation d'ensembles atomiques pour l'optique quantique : Échange de photons uniques entre deux mémoires quantiques distantes - 23/02/2006
 Laboratoire Aimé Cotton, Université Paris-Sud, Orsay
 - Utilisation d'ensembles atomiques pour l'optique quantique : Échange de photons uniques entre deux mémoires quantiques distantes - 24/11/2005
 Laboratoire de Spectrométrie Physique, Université Joseph Fourier, Grenoble
 - Strong localization of light in an atomic disordered medium : Is ^{88}Sr a good candidate ? - 7/4/2004
 School of Physics, Georgia Institute of Technology, Atlanta.

5 Conférences

- **Conférencier invité** Revival of Silenced Echo for optical quantum memory in rare-earth crystals, Calgary, 23-27/07/2012
- **Conférencier invité** Quantum light storage in rare-earth doped crystals : large multiplexing capacity of Tm :YAG, XIV Feofilov Symposium, St. Petersburg, 18-21/10/2010
- **Conférencier invité** : Quantum light storage in rare-earth doped crystals : recent progresses toward efficient and large-capacity single photon storage, 17th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids (DPC '10), Argonne IL, 20-25/6/2010
- **Conférencier invité** : Few photons storage in thulium doped crystals, Physics of Quantum Electronics PQE2010, Snowbird UT, 3-7/1/2010
- **Conférencier invité** : Light storage in Tm :YAG, HBSM 2009, Palm Cove, 22-27/06/2009
- **Conférencier invité** : Possibilités offertes par les cristaux dopés terre-rare pour le stockage quantique : l'exemple du Tm, Colloque final du Gdr-Info Quantique, Paris VII, 6-8/10/2008
- **Communication orale** : Quantum storage investigation in rare-earth ion doped crystals : The example of Tm, Workshop on Rare Earth Ion Doped Solids for Quantum Information, Darmstadt 2008, 18-20/3/2008
- **Conférencier invité** : Quantum storage investigation in thulium based materials, SMQIOA Workshop, Bozeman, MO, 25-27/1/2008
- **Participation** : Workshop "Quantum information processing in Rare Earth

- Doped Materials”, Paris, 25-27/4/2007
- **Conférencier invité** : Light-matter interface with atomic ensembles, IC-QFT’2006, Hangzhou China, 25-31/8/2006
 - **Communication orale** : Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories, Physics of Quantum Electronics PQE2006, Snowbird UT, 2-6/1/2006
 - **Communication orale** : Phase coherence in multiple scattering : weak and intense monochromatic light wave propagating in a cold strontium cloud, SPIE05 Optics and photonics, San Diego CA, 31/7-4/8/2005
 - **Conférencier invité** : Quantum networking with atomic ensembles, IQEC / CLEO-PR 2005 , Tokyo Japan 11-15/7/2005
 - **Participation** : 2005 Gordon Research Conferences on Atomic Physics, Tilton NH 26/6 - 1/7/2005
 - **Conférencier invité** : A dense MOT of strontium using the intercombination line : towards localization effects, CAUAC Final meeting, Porquerolles France 24-27/5/2004
 - **Poster** : A cold strontium MOT to study localization of light, 2nd Workshop on Cold alkaline-earth atoms, Copenhagen Denmark 11-13/9/2003
 - **Poster** : 7th International Workshop on Atom Optics and Interferometry, Lunteren Netherland 28/9-2/10/2002
 - **Participation** : Wave physics with cold atomic gases, Grasse France, 5-6/2/2001
 - **Participation** : Lumières sur les systèmes moléculaires organisés VII, Marly-le-roi France, 20-22/6/2000

6 Publications

6.1 Journaux

- [1] M. F. Pascual-Winter, R.-C. Tongning, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët. Spin coherence lifetime extension in Tm^{3+} :YAG through dynamical decoupling. *Phys. Rev. B*, 86 :184301, Nov 2012.
- [2] G. Hétet, D. Wilkowski, and T. Chanelière. Quantum memory with a controlled homogeneous splitting. *arXiv/1208.0677*, 2012.
- [3] M. F. Pascual-Winter, R. C. Tongning, R. Lauro, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët. Adiabatic passage with spin locking in Tm^{3+} :YAG. *Phys. Rev. B*, 86 :064301, Aug 2012.
- [4] M Bonarota, J-L Le Gouët, S A Moiseev, and T Chanelière. Atomic frequency comb storage as a slow-light effect. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(12) :124002, 2012.

- [5] V. Damon, M. Bonarota, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët. Revival of silenced echo and quantum memory for light. *New Journal of Physics*, 13(9) :093031, 2011.
- [6] F. Beaudoux, A. Ferrier, O. Guillot-Noël, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët, and Ph. Goldner. Emission of photon echoes in a strongly scattering medium. *Opt. Express*, 19(16) :15236–15243, Aug 2011.
- [7] R. Lauro, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët. Adiabatic refocusing of nuclear spins in Tm^{3+} :YAG. *Phys. Rev. B*, 83(3) :035124, Jan 2011.
- [8] M. Bonarota, J.-L. Le Gouët, and T. Chanelière. Highly multimode storage in a crystal. *New Journal of Physics*, 13(1) :013013, 2011.
- [9] T. Chanelière, J. Ruggiero, M. Bonarota, M. Afzelius, and J.-L. Le Gouët. Efficient light storage in a crystal using an atomic frequency comb. *New Journal of Physics*, 12(2) :023025, 2010.
- [10] Nicolas Sangouard, Christoph Simon, Jiří Minář, Mikael Afzelius, Thierry Chanelière, Nicolas Gisin, Jean-Louis Le Gouët, Hugues de Riedmatten, and Wolfgang Tittel. Impossibility of faithfully storing single photons with the three-pulse photon echo. *Phys. Rev. A*, 81(6) :062333, Jun 2010.
- [11] 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(1) :32–37, 2010.
- [12] Vianney Damon, Vincent Crozatier, Thierry Chanelière, Jean-Louis Le Gouët, and Ivan Lorgeré. Broadband photonic arbitrary waveform generation using a frequency agile laser at $1.5\ \mu\text{m}$. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27(3) :524–530, 2010.
- [13] T. Chanelière, M. Bonarota, V. Damon, R. Lauro, J. Ruggiero, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët. Light storage protocols in Tm :YAG. *J. Lumin.*, 130(9) :1572 – 1578, 2010.
- [14] R. Zhao, S. D. Jenkins, C. J. Campbell, D. N. Matsukevich, T. Chanelière, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Continuous quantum measurement of a light-matter system. *Phys. Rev. A*, 81(3) :031802, Mar 2010.
- [15] M. Bonarota, J. Ruggiero, J. L. Le Gouët, and T. Chanelière. Efficiency optimization for atomic frequency comb storage. *Phys. Rev. A*, 81(3) :033803, Mar 2010.
- [16] Ph. Goldner, O. Guillot-Noël, F. Beaudoux, Y. Le Du, J. Lejay, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët, L. Rippe, A. Amari, A. Walther, and S. Kröll. Long coherence lifetime and electromagnetically induced transparency in a highly-spin-concentrated solid. *Phys. Rev. A*, 79(3) :033809, Mar 2009.
- [17] 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.

- [18] R. Lauro, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët. Spectral hole burning for stopping light. *Phys. Rev. A*, 79(5) :053801, May 2009.
- [19] Jérôme Ruggiero, Jean-Louis Le Gouët, Christoph Simon, and Thierry Chanelière. Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol. *Phys. Rev. A*, 79(5) :053851, May 2009.
- [20] W. Tittel, M. Afzelius, R.L. Cone, T. Chanelière, Stefan Kröll, SA Moiseev, and M. Sellars. Photon-echo quantum memory in solid state systems. *Laser Photonics Reviews*, 4(2) :244–267, 2010.
- [21] A. L. Alexander, R. Lauro, A. Louchet, T. Chanelière, and J. L. Le Gouët. Stimulated raman adiabatic passage in Tm^{3+} :YAG. *Phys. Rev. B*, 78(14) :144407, Oct 2008.
- [22] 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. Tm^{3+} : Y_2O_3 investigated for a quantum light storage application. *Phys. Rev. B*, 77(24) :245127, Jun 2008.
- [23] A. Louchet, Y. Le Du, F. Bretenaker, T. Chanelière, F. Goldfarb, I. Lorgéré, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and Ph. Goldner. Optical excitation of nuclear spin coherence in a Tm^{3+} :YAG crystal. *Phys. Rev. B*, 77(19) :195110, May 2008.
- [24] Goldfarb, F., Ghosh, J., David, M., Ruggiero, J., Chanelière, T., Le Gouët, J.-L., Gilles, H., Ghosh, R., and Bretenaker, F. Observation of ultra-narrow electromagnetically induced transparency and slow light using purely electronic spins in a hot atomic vapor. *EPL*, 82(5) :54002, 2008.
- [25] A. Louchet, Y. Le Du, T. Brouri, F. Bretenaker, T. Chanelière, F. Goldfarb, I. Lorgéré, and J.-L. Le Gouët. Optical investigation of nuclear spin coherence in Tm :YAG. *Solid State Sciences*, 10(10) :1374 – 1378, 2008.
- [26] V. Crozatier , G. Gorju , V. Lavielle , A. Louchet , F. Bretenaker, T. Chaneliere, F. Goldfarb, and J.-L. Le Gouët. Solid state atomic processors for light. *J. Europ. Opt. Soc. Rap. Public*, 3 :08025, 2008.
- [27] G Gorju, A Louchet, D Paboeuf, F Bretenaker, F Goldfarb, T Chanelière, I Lorgéré, J-L Le Gouët, O Guillot-Noël, and Ph Goldner. Stimulated optical pumping in a Tm^{3+} :YAG crystal. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 19(38) :386226, 2007.
- [28] T. Chanelière, L. He, R. Kaiser, and D. Wilkowski. Three dimensional cooling and trapping with a narrow line. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 46(3) :507–515, Mar 2008.
- [29] G. Labeyrie, G.L. Gattobigio, T. Chanelière, G.L. Lippi, T. Ackemann, and R. Kaiser. Nonlinear lensing mechanisms in a cloud of cold atoms. *Eur. Phys. J. D*, 41(2) :337–348, 2007.

- [30] S.-Y. Lan, S. D. Jenkins, T. Chanelière, D. N. Matsukevich, C. J. Campbell, R. Zhao, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Dual-species matter qubit entangled with light. *Phys. Rev. Lett.*, 98(12) :123602, Mar 2007.
- [31] S. D. Jenkins, D. N. Matsukevich, T. Chanelière, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Quantum telecommunication with atomic ensembles. *J. Opt. Soc. Am. B*, 24(2) :316–323, 2007.
- [32] T. Chanelière, D. N. Matsukevich, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, R. Zhao, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Quantum interference of electromagnetic fields from remote quantum memories. *Phys. Rev. Lett.*, 98(11) :113602, Mar 2007.
- [33] D. N. Matsukevich, T. Chanelière, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Deterministic single photons via conditional quantum evolution. *Phys. Rev. Lett.*, 97(1) :013601, Jul 2006.
- [34] T. Chanelière, D. N. Matsukevich, S. D. Jenkins, T. A. B. Kennedy, M. S. Chapman, and A. Kuzmich. Quantum telecommunication based on atomic cascade transitions. *Phys. Rev. Lett.*, 96(9) :093604, Mar 2006.
- [35] D. N. Matsukevich, T. Chanelière, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Entanglement of remote atomic qubits. *Phys. Rev. Lett.*, 96(3) :030405, Jan 2006.
- [36] S. D. Jenkins, D. N. Matsukevich, T. Chanelière, A. Kuzmich, and T. A. B. Kennedy. Theory of dark-state polariton collapses and revivals. *Phys. Rev. A*, 73(2) :021803, Feb 2006.
- [37] D. N. Matsukevich, T. Chanelière, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Observation of dark state polariton collapses and revivals. *Phys. Rev. Lett.*, 96(3) :033601, Jan 2006.
- [38] T. Chanelière, DN Matsukevich, SD Jenkins, S.Y. Lan, TAB Kennedy, and A. Kuzmich. Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories. *Nature*, 438(7069) :833–836, 2005.
- [39] D. N. Matsukevich, T. Chanelière, M. Bhattacharya, S.-Y. Lan, S. D. Jenkins, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Entanglement of a photon and a collective atomic excitation. *Phys. Rev. Lett.*, 95(4) :040405, Jul 2005.
- [40] Thierry Chanelière, Jean-Louis Meunier, Robin Kaiser, Christian Miniatura, and David Wilkowski. Extra-heating mechanism in doppler cooling experiments. *J. Opt. Soc. Am. B*, 22(9) :1819–1828, 2005.
- [41] T. Chanelière, Y Bidel, Bruce G. Klappauf, R. Kaiser, and D. Wilkowski. Caractérisation d’un piège magnéto-optique de strontium. *Revue française de métrologie*, 4 :17–27, 2005.
- [42] T. Chanelière, D. Wilkowski, Y. Bidel, R. Kaiser, and C. Miniatura. Saturation-induced coherence loss in coherent backscattering of light. *Phys. Rev. E*, 70(3) :036602, Sep 2004.

- [43] Bruce G. Klappauf, Yannick Bidel, David Wilkowski, Thierry Chanelière, and Robin Kaiser. Detailed study of an efficient blue laser source by second-harmonic generation in a semimonolithic cavity for the cooling of strontium atoms. *Appl. Opt.*, 43(12) :2510–2527, 2004.
- [44] David Wilkowski, Yannick Bidel, Thierry Chanelière, Dominique Delande, Thibaut Jonckheere, Bruce Klappauf, Guillaume Labeyrie, Christian Miniatura, Cord Axel Müller, Olivier Sigwarth, and Robin Kaiser. Coherent backscattering of light by resonant atomic dipole transitions. *J. Opt. Soc. Am. B*, 21(1) :183–190, 2004.
- [45] T. Chanelière, J.-L. Le Gouët, and D. Ricard. Persistent spectral hole-burning materials as pulse shapers : phase analysis of a chirped coherent filter. *J. Opt. Soc. Am. B*, 20(3) :585–590, 2003.
- [46] T. Chanelière, S. Fraigne, J.-P. Galaup, M. Joffre, J.-L. Le Gouët, J.-P. Likforman, and D. Ricard. Femtosecond pulse shaping based on spectral hole burning. *Eur. Phys. J. AP*, 20(3) :205–211, 2002.

6.2 Actes de congrès

- [1] Anne Louchet-Chauvet, Romain Lauro, Philippe Goldner, Francois Ramaz, Thierry Chaneliere, and Jean-Louis Le Gouet. High resolution, large dynamic range spectral filtering at 800 nm using Tm :YAG crystals. volume 7948 of *Proceedings of SPIE*. SPIE, 2011. Conference on Advances in Photonics of Quantum Computing, Memory, and Communication IV, San Francisco, CA, JAN 25-27, 2011.
- [2] Vianney Damon, Vincent Crozatier, Thierry Chanelière, Jean-Louis Le Gouët, and Ivan Lorgéré. Broadband photonic arbitrary waveform generation using a frequency agile laser at 1.5 μ m. In *Conference on Lasers and Electro-Optics*, page CThF4. Optical Society of America, 2010.
- [3] Romain Lauro, Thierry Chanelière, and Jean L. Le Gouët. Trapping light in a crystal. In *Conference on Lasers and Electro-Optics/International Quantum Electronics Conference*, page IThM2. Optical Society of America, 2009.
- [4] Jérôme Rugierro, Romain Lauro, Jean-Louis Le Gouët, and Thierry Chanelière. Light storage using an atomic frequency comb. In *Conference on Lasers and Electro-Optics/International Quantum Electronics Conference*, page IThM3. Optical Society of America, 2009.
- [5] O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, F. Beaudoux, J. Lejay, A. Amari, A. Walther, L. Rippe, S. Kröll, T. Chanelière, and J. L. Le Gouët. Rare earth doped crystals for quantum information devices. In *CLEO/Europe and QECC 2009 Conference Digest*, page CE15. Optical Society of America, 2009.
- [6] R. Lauro, J. Ruggiero, A. Louchet, A. Alexander, T. Chaneliere, I. Lorgere, F. Bretenaker, F. Goldfarb, and J-L Le Gouet. Thulium doped crystals

- for quantum information storage. *Journal of luminescence*, 129(12) :1951–1954, DEC 2009. International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL’08).
- [7] Fabienne Goldfarb, Joyee Ghosh, Martin David, Jerome Ruggiero, Thierry Chaneliere, Jean-Louis Le Gouet, Herve Gilles, Rupamanjari Ghosh, and Fabien Bretenaker. Electromagnetically induced transparency (eit) and slow light in a4he* hot atomic vapor. In *Slow and Fast Light*, page SMA4. Optical Society of America, 2008.
 - [8] Anne Louchet, Yann Le Du, Fabien Bretenaker, Thierry Chanelière, Fabienne Goldfarb, Ivan Lorgeté, and Jean-Louis Le Gouet. Optical coherent manipulation of a spin wave in tm :yag. In *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, page QThH3. Optical Society of America, 2007.
 - [9] Dzmitry Matsukevich, Stewart Jenkins, Thierry Chaneliere, O. Austin. Collins, Shau-Yu Lan, Corey Campbell, Ran Zhao, T. A. Brian. Kennedy, and Alex Kuzmich. Quantum telecommunication with atoms and photons. In *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, page QTuF4. Optical Society of America, 2007.
 - [10] S. D. Jenkins, O. A. Collins, S.-Y. Lan, T. Chanelière, D. N. Matsukevich, C. J. Campbell, R. Zhao, H.-H. Jen, A. Kuzmich, and T. A. B. Kennedy. Toward memory-insensitive quantum repeaters with dual species matter qubits. In *CLEO/Europe and IQEC 2007 Conference Digest*, page IF14. Optical Society of America, 2007.
 - [11] Dzmitry N. Matsukevich, Thierry Chaneliere, Stewart D. Jenkins, Shau-Yu Lan, T. A. Kennedy, and Alexander Kuzmich. Light-matter interface in quantum networks. In *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, page QMD1. Optical Society of America, 2006.
 - [12] Stewart D. Jenkins, Dzmitry N. Matsukevich, Thierry Chaneliere, Shau-Yu Lan, Alex Kuzmich, and T. A. Kennedy. Entanglement of remote collective atomic qubits. In *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, page QMD4. Optical Society of America, 2006.
 - [13] Brian Kennedy, Stewart Jenkins, O. A. Collins, D. N. Matsukevich, T. Chaneliere, S.-Yu. Lan, and A. Kuzmich. Light-matter interface for quantum information. In *Frontiers in Optics*, page LWA2. Optical Society of America, 2006.
 - [14] David Wilkowski, Yannick Bidel, Thierry Chaneliere, Robin Kaiser, Bruce Klappauf, and Christian Miniatura. Phase coherence in multiple scattering :

weak and intense monochromatic light wave propagating in a cold strontium cloud. In *The Nature of Light : What Is a Photon ?*, volume 5866, pages 298–310. SPIE, 2005.

- [15] T. Chanelière, G. Labeyrie, C. Miniatura, D. Wilkowski, and R. Kaiser. Quantum mesoscopic physics : Coherent backscattering of light by cold atoms. *J. Phys. IV France*, 119 :19–26, 2004.
- [16] D. Wilkowski, Y. Bidet, T. Chanelière, R. Kaiser, B. Klappauf, G. Labeyrie, C. A. Müller, and Ch. Miniatura. Light transport in cold atoms : the fate of coherent backscattering in the weak localization regime. *Physica B : Condensed Matter*, 328(3-4) :157 – 162, 2003.

6.3 Brevets

- A. M. Kuzmich, D. N. Matsukevich T. Chaneliere S. D. Jenkins T.A.B. Kennedy M. S. Chapman,
« Quantum repeater using atomic cascade transitions »
IPC8 Class : AG02F101FI, USPC Class : 2502141
- J-L Le Gouët, T. Chanelière
« Photon Echo quantum memory and method »
Demande de brevet aux Etats-Unis N° 13/454,388

6.4 Prix

Sturge Prize 2010 honored at the 17th International Conference on Dynamical Process in Excited States of Solids (DPC’10)

Références

- [Abella1966] I. D. Abella, N. A. Kurnit, S. R. Hartmann. Photon echoes. *Phys. Rev.*, 141, 391–406 (1966).
- [Abragam1961] A. Abragam. *Les principes du magnétisme nucléaire*. Paris : PUF (1961).
- [Afzelius2010a] M. Afzelius C. Simon. Impedance-matched cavity quantum memory. *Phys. Rev. A*, 82, 022310 (2010).
- [Afzelius2009] M. Afzelius, C. Simon, H. de Riedmatten, N. Gisin. Multimode quantum memory based on atomic frequency combs. *Phys. Rev. A*, 79(5), 052329 (2009).
- [Afzelius2010b] M. Afzelius, I. Usmani, A. Amari, B. Lauritzen, A. Walther, C. Simon, N. Sangouard, J. Minář, H. de Riedmatten, N. Gisin, S. Kröll. Demonstration of atomic frequency comb memory for light with spin-wave storage. *Phys. Rev. Lett.*, 104(4), 040503 (2010).
- [Akamatsu2004] D. Akamatsu, K. Akiba, M. Kozuma. Electromagnetically induced transparency with squeezed vacuum. *Phys. Rev. Lett.*, 92, 203602 (2004).
- [Alexander2008] A. L. Alexander, R. Lauro, A. Louchet, T. Chanelière, J. L. Le Gouët. Stimulated raman adiabatic passage in Tm^{3+} :YAG. *Phys. Rev. B*, 78(14), 144407 (2008).
- [Alexander2006] A. L. Alexander, J. J. Longdell, M. J. Sellars, N. B. Manson. Photon echoes produced by switching electric fields. *Phys. Rev. Lett.*, 96, 043602 (2006).
- [Allen1987] L. Allen J. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Courier Dover Publications (1987).
- [Amsüss2011] R. Amsüss, C. Koller, T. Nöbauer, S. Putz, S. Rotter, K. Sandner, S. Schneider, M. Schramböck, G. Steinhauser, H. Ritsch, J. Schmiedmayer, J. Majer. Cavity qed with magnetically coupled collective spin states. *Phys. Rev. Lett.*, 107, 060502 (2011).
- [Appel2008] J. Appel, E. Figueroa, D. Korystov, M. Lobino, A. I. Lvovsky. Quantum memory for squeezed light. *Phys. Rev. Lett.*, 100, 093602 (2008).
- [Arcizet2011] O. Arcizet, V. Jacques, A. Siria, P. Poncharal, P. Vincent, S. Seidelin. A single nitrogen-vacancy defect coupled to a nanomechanical oscillator. *Nat Phys*, 7(11), 879–883 (2011).
- [Azadeh1998] M. Azadeh, C. Sjaarda Cornish, W. R. Babbitt, L. Tsang. Efficient photon echoes in optically thick media. *Phys. Rev. A*, 57, 4662–4668 (1998).
- [Baldit2005] E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, J. A. Levenson, V. Rouget. Ultra-low light propagation in an inhomogeneously broadened rare-earth ion-doped crystal. *Phys. Rev. Lett.*, 95, 143601 (2005).
- [Barber2010] Z. Barber, C. Harrington, C. Thiel, W. Babbitt, R. Krishna Mohan. Angle of arrival estimation using spectral interferometry. *J. Lumin.*, 130(9), 1614–1618 (2010).
- [Bateman1954] H. Bateman, A. Erdélyi, U. S. O. of Naval Research. *Tables of integral transforms : Based, in part, on notes left by Harry Bateman*. California Institute of technology. Bateman Manuscript project. A. Erdélyi, editor. W. Magnus, F. Oberhettinger, F. G. Tricomi, research associates. McGraw-Hill (1954).

- [Beaudoux2011] F. Beaudoux, A. Ferrier, O. Guillot-Noël, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët, P. Goldner. Emission of photon echoes in a strongly scattering medium. *Opt. Express*, 19(16), 15236–15243 (2011).
- [Beer1852] Beer. Bestimmung der Absorption des rothen Lichts in farbigen Flüssigkeiten. *Annalen der Physik*, 162(5), 78–88 (1852).
- [Bennett2010] S. D. Bennett, L. Cockins, Y. Miyahara, P. Grütter, A. A. Clerk. Strong electromechanical coupling of an atomic force microscope cantilever to a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 104, 017203 (2010).
- [Boller1991] K.-J. Boller, A. Imamolu, S. E. Harris. Observation of electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 66, 2593–2596 (1991).
- [Bonarota2011] M. Bonarota, J.-L. L. Gouët, T. Chanelière. Highly multimode storage in a crystal. *New Journal of Physics*, 13(1), 013013 (2011).
- [Bonarota2012] M. Bonarota, J.-L. L. Gouët, S. A. Moiseev, T. Chanelière. Atomic frequency comb storage as a slow-light effect. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(12), 124002 (2012).
- [Bonarota2010] M. Bonarota, J. Ruggiero, J. L. L. Gouët, T. Chanelière. Efficiency optimization for atomic frequency comb storage. *Phys. Rev. A*, 81(3), 033803 (2010).
- [Böttger2006] T. Böttger, C. W. Thiel, Y. Sun, R. L. Cone. Optical decoherence and spectral diffusion at 1.5 μm in $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ versus magnetic field, temperature, and Er^{3+} concentration. *Phys. Rev. B*, 73(7), 75101 (2006).
- [Bouguer1729] P. Bouguer. *Traité d’optique sur la gradation de la lumière* (1729).
- [Brillouin1960] L. Brillouin. *Wave propagation and group velocity*. Pure and applied physics. Academic Press (1960).
- [Buchler2010] B. C. Buchler, M. Hosseini, G. Hétet, B. M. Sparkes, P. K. Lam. Precision spectral manipulation of optical pulses using a coherent photon echo memory. *Opt. Lett.*, 35(7), 1091–1093 (2010).
- [Bungenstock2000] C. Bungenstock, T. Tröster, W. B. Holzapfel. Effect of pressure on free-ion and crystal-field parameters of Pr^{3+} in lOCl ($l = \text{La, Pr, Gd}$). *Phys. Rev. B*, 62, 7945–7955 (2000).
- [Böttger2002] T. Böttger. *Laser Frequency Stabilization to Spectral Hole Burning Frequency References in Erbium-Doped Crystals : Material and Device Optimization*. PhD thesis, Montana State University (2002).
- [Chalony2011] M. Chalony, R. Pierrat, D. Delande, D. Wilkowski. Coherent flash of light emitted by a cold atomic cloud. *Phys. Rev. A*, 84, 011401 (2011).
- [Chanelière2010a] T. Chanelière, M. Bonarota, V. Damon, R. Lauro, J. Ruggiero, I. Lorgère, J.-L. Le Gouët. Light storage protocols in $\text{Tm}:\text{YAG}$. *J. Lumin.*, 130(9), 1572 – 1578 (2010).
- [Chanelière2005a] T. Chanelière, D. Matsukevich, S. Jenkins, S. Lan, T. Kennedy, A. Kuzmich. Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories. *Nature*, 438(7069), 833–836 (2005).
- [Chanelière2005b] T. Chanelière, J.-L. Meunier, R. Kaiser, C. Miniatura, D. Wilkowski. Extra-heating mechanism in doppler cooling experiments. *J. Opt. Soc. Am. B*, 22(9), 1819–1828 (2005).

- [Chanelière2010b] T. Chanelière, J. Ruggiero, M. Bonarota, M. Afzelius, J.-L. L. Gouët. Efficient light storage in a crystal using an atomic frequency comb. *New Journal of Physics*, 12(2), 023025 (2010).
- [Chanelière2008] T. Chanelière, J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, W. Tittel, J.-H. Mun, A. Jouini, A. Yoshikawa, G. Boulon, Y. L. Du, P. Goldner, F. Beaudoux, J. Vincent, E. Antic-Fidancev, 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).
- [Chanelière2004] T. Chanelière, D. Wilkowski, Y. Bidet, R. Kaiser, C. Miniatura. Saturation-induced coherence loss in coherent backscattering of light. *Phys. Rev. E*, 70(3), 036602 (2004).
- [Chanelière2012] T. Chanelière. Revival of silenced echo for optical quantum memory in rare-earth crystals. In *21th International Laser Physics Workshop (LPHYS'12)* (2012).
- [Chen2011] Q.-F. Chen, A. Troshyn, I. Ernsting, S. Kayser, S. Vasilyev, A. Nevsky, S. Schiller. Spectrally narrow, long-term stable optical frequency reference based on a $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ crystal at cryogenic temperature. *Phys. Rev. Lett.*, 107, 223202 (2011).
- [Chen1979] Y. Chen, K. Chiang, S. Hartmann. Photon echo relaxation in $\text{LaF}_3:\text{Pr}^{3+}$. *Optics Communications*, 29(2), 181 – 185 (1979).
- [Chijioko2010] A. Chijioko J. Lawall. Vibration spectrum of a pulse-tube cryostat from 1Hz to 20kHz. *Cryogenics*, 50(4), 266 – 270 (2010).
- [Clark2012] J. Clark, K. Heshami, C. Simon. Photonic quantum memory in two-level ensembles based on refractive index modulation : equivalence to gradient echo memory. In *21th International Laser Physics Workshop (LPHYS'12)* (2012).
- [Clausen2012] C. Clausen, F. Bussi eres, M. Afzelius, N. Gisin. Quantum storage of heralded polarization qubits in birefringent and anisotropically absorbing materials. *Phys. Rev. Lett.*, 108, 190503 (2012).
- [Clausen2011] C. Clausen, I. Usmani, F. Bussieres, N. Sangouard, M. Afzelius, H. de Riedmatten, N. Gisin. Quantum storage of photonic entanglement in a crystal. *Nature*, 469(7331), 508–511 (2011).
- [Cornish2000] C. S. Cornish, W. R. Babbitt, L. Tsang. Demonstration of highly efficient photon echoes. *Opt. Lett.*, 25(17), 1276–1278 (2000).
- [Crozatier2006] V. Crozatier, G. Gorju, J.-L. Le Gou  t, F. Bretenaker, I. Lorger  . Wideband and high-resolution coherent optical transients with a frequency-agile laser oscillator. *Opt. Lett.*, 31(22), 3264–3266 (2006).
- [Crozatier2007] V. Crozatier, G. Gorju, J.-L. Le Gou  t, F. Bretenaker, I. Lorger  . Photon echo chirp transform using a stabilized frequency agile laser. *Journal of Luminescence*, 127(1), 104 – 109 (2007).
- [Damon2011] V. Damon, M. Bonarota, A. Louchet-Chauvet, T. Chanel  re, J.-L. Le Gou  t. Revival of silenced echo and quantum memory for light. *New Journal of Physics*, 13(9), 093031 (2011).
- [Damon2010] V. Damon, V. Crozatier, T. Chanel  re, J.-L. Le Gou  t, I. Lorger  . Broadband photonic arbitrary waveform generation using a frequency agile laser at $1.5\text{ }\mu\text{m}$. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27(3), 524–530 (2010).
- [de Riedmatten2008] H. de Riedmatten, M. Afzelius, M. U. Staudt, C. Simon, N. Gisin. A solid-state light-matter interface at the single-photon level. *Nature*, 456(7223), 773–777 (2008).

- [de Seze2005] F. de Seze, F. Dahes, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J. L. Le Gouët. Coherent driving of $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ ions using a complex hyperbolic secant optical field. *Eur. Phys. J. D*, 33, 343 (2005).
- [de Seze2006] F. de Seze, A. Louchet, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, P. Goldner. Experimental tailoring of a three-level Λ system in $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. *Phys. Rev. B*, 73(8), 85112 (2006).
- [Duan2001] L.-M. Duan, M. D. Lukin, J. I. Cirac, P. Zoller. Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics. *Nature*, 414(6862), 413–418 (2001).
- [Eberly1998] J. Eberly. Area theorem rederived. *Opt. Express*, 2(5), 173–176 (1998).
- [Eisaman2005] M. D. Eisaman, A. André, F. Massou, M. Fleischhauer, A. S. Zibrov, M. D. Luki. Electromagnetically induced transparency with tunable single-photon pulses. *Nature (London)*, 438, 837 (2005).
- [Ekin2006] J. Ekin. *Experimental Techniques for Low-temperature Measurements : Cryostat Design, Material Properties and Superconductor Critical-current Testing*. OUP Oxford (2006).
- [England2012] D. G. England, P. S. Michelberger, T. F. M. Champion, K. F. Reim, K. C. Lee, M. R. Sprague, X.-M. Jin, N. K. Langford, W. S. Kolthammer, J. Nunn, I. a. Walmsley. High-fidelity polarization storage in a gigahertz bandwidth quantum memory. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(12), 124008 (2012).
- [Equall1995] R. W. Equall, R. L. Cone, R. M. Macfarlane. Homogeneous broadening and hyperfine structure of optical transitions in $\text{pr}^{3+}:\text{y}_2\text{siO}_5$. *Phys. Rev. B*, 52, 3963–3969 (1995).
- [Fleischhauer2000] M. Fleischhauer M. D. Lukin. Dark-state polaritons in electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 84, 5094–5097 (2000).
- [Flinn1994] G. P. Flinn, K. W. Jang, J. Ganem, M. L. Jones, R. S. Meltzer, R. M. Macfarlane. Sample-dependent optical dephasing in bulk crystalline samples of $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}^{3+}$. *Phys. Rev. B*, 49, 5821–5827 (1994).
- [Foster2009] M. A. Foster, R. Salem, Y. Okawachi, A. C. Turner-Foster, M. Lipson, A. L. Gaeta. Ultrafast waveform compression using a time-domain telescope. *Nat Photon*, 3(10), 581–585 (2009).
- [Garwood2001] M. Garwood L. DelaBarre. The return of the frequency sweep : Designing adiabatic pulses for contemporary nmr. *Journal of Magnetic Resonance*, 153(2), 155 – 177 (2001).
- [Gires1964] F. Gires P. Tournois. Interféromètre utilisable pour la compression d’impulsions lumineuses modulées en fréquence. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 258, 6112–6115 (1964).
- [Glorieux2012] Q. Glorieux, J. B. Clark, A. M. Marino, Z. Zhou, P. D. Lett. Temporally multiplexed storage of images in a gradient echo memory. *Opt. Express*, 20(11), 12350–12358 (2012).
- [Goldner2009] P. Goldner, O. Guillot-Noël, F. Beaudoux, Y. Le Du, J. Lejay, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët, L. Rippe, A. Amari, A. Walther, S. Kröll. Long coherence lifetime and electromagnetically induced transparency in a highly-spin-concentrated solid. *Phys. Rev. A*, 79(3), 033809 (2009).

- [Goldner2006a] P. Goldner, O. Guillot-Noël, A. Louchet, F. de Sèze, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët. Hole burning study of Tm^{3+} :YAG hyperfine structure for quantum storage applications. *J. Lumin.*, 119, 293 (2006).
- [Goldner2006b] P. Goldner, O. Guillot-Noël, A. Louchet, F. de Seze, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët. Hyperfine structure of Tm^{3+} in YAG for quantum storage applications. *Opt. Mat.*, 28(6-7), 649 (2006).
- [Gorju2007a] G. Gorju, A. Chauve, V. Crozatier, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, F. Bretenaker. 10GHz Bandwidth rf spectral analyzer with megahertz resolution based on spectral-spatial holography in Tm^{3+} :YAG : experimental and theoretical study. *J. Opt. Soc. Am. B*, 24(3), 457–470 (2007).
- [Gorju2007b] G. Gorju, V. Crozatier, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, F. Bretenaker. Wide-band rf spectral analyzer based on spectral-spatial holography in Tm^{3+} :YAG achieved with a highly stabilized frequency chirped laser. *Journal of Luminescence*, 127(1), 110 – 115 (2007).
- [Gorshkov2007a] A. V. Gorshkov, A. André, M. Fleischhauer, A. S. Sørensen, M. D. Lukin. Universal approach to optimal photon storage in atomic media. *Phys. Rev. Lett.*, 98, 123601 (2007).
- [Gorshkov2007b] A. V. Gorshkov, A. André, M. D. Lukin, A. S. Sørensen. Photon storage in λ -type optically dense atomic media. i. cavity model. *Phys. Rev. A*, 76, 033804 (2007).
- [Goto2010] H. Goto, S. Nakamura, K. Ichimura. Experimental determination of intracavity losses of monolithic fabry-perot cavities made of Pr^{3+} :Y₂SiO₅. *Opt. Express*, 18(23), 23763–23775 (2010).
- [Grischkowsky1973] D. Grischkowsky. Adiabatic following and slow optical pulse propagation in rubidium vapor. *Phys. Rev. A*, 7(6), 2096–2102 (1973).
- [Gross1982] M. Gross S. Haroche. Superradiance : An essay on the theory of collective spontaneous emission. *Physics Reports*, 93(5), 301 – 396 (1982).
- [Gruber1989] J. B. Gruber, M. E. Hills, R. M. Macfarlane, C. A. Morrison, G. A. Turner, G. J. Quarles, G. J. Kintz, L. Esterowitz. Spectra and energy levels of Tm^{3+} :Y₃Al₅O₁₂. *Phys. Rev. B*, 40, 9464–9478 (1989).
- [Guillot-Noël2005] O. Guillot-Noël, P. Goldner, E. Antic-Fidancev, J.-L. Le Gouët. Analysis of magnetic interactions in rare-earth-doped crystals for quantum manipulation. *Phys. Rev. B*, 71, 174409 (2005).
- [Gündoğan2012] M. Gündoğan, P. M. Ledingham, A. Almasi, M. Cristiani, H. de Riedmatten. Quantum storage of a photonic polarization qubit in a solid. *Phys. Rev. Lett.*, 108, 190504 (2012).
- [Hammerer2010] K. Hammerer, A. S. Sørensen, E. S. Polzik. Quantum interface between light and atomic ensembles. *Rev. Mod. Phys.*, 82, 1041–1093 (2010).
- [Hammerer2009] K. Hammerer, M. Wallquist, C. Genes, M. Ludwig, F. Marquardt, P. Treutlein, P. Zoller, J. Ye, H. J. Kimble. Strong coupling of a mechanical oscillator and a single atom. *Phys. Rev. Lett.*, 103, 063005 (2009).
- [Harris1997] S. E. Harris. Electromagnetically induced transparency. *Physics Today*, 50(7), 36–42 (1997).
- [Hartmann1968] S. R. Hartmann. Photon, spin, and raman echoes. *IEEE J. Quantum Electron.*, 4, 802 (1968).

- [Hastings-Simon2006] S. R. Hastings-Simon, M. U. Staudt, M. Afzelius, P. Baldi, D. Jaccard, W. Tittel, N. Gisin. Controlled stark shifts in Er^{3+} -doped crystalline and amorphous waveguides for quantum state storage. *Optics Communications*, 266(2), 716 – 719 (2006).
- [Hedges2010] M. P. Hedges, J. J. Longdell, Y. Li, M. J. Sellars. Efficient quantum memory for light. *Nature*, 465(7301), 1052–1056 (2010).
- [Hétet2008a] G. Hétet, M. Hosseini, B. M. Sparkes, D. Oblak, P. K. Lam, B. C. Buchler. Photon echoes generated by reversing magnetic field gradients in a rubidium vapor. *Opt. Lett.*, 33(20), 2323–2325 (2008).
- [Hétet2008b] G. Hétet, J. J. Longdell, A. L. Alexander, P. K. Lam, M. J. Sellars. Electro-optic quantum memory for light using two-level atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 100, 023601 (2008).
- [Hétet2012] G. Hétet, D. Wilkowski, T. Chanelière. Quantum memory with a controlled homogeneous splitting. *arXiv/1208.0677* (2012).
- [Higginbottom2012] D. B. Higginbottom, B. M. Sparkes, M. Rancic, O. Pinel, M. Hosseini, P. K. Lam, B. C. Buchler. Spatial-mode storage in a gradient-echo memory. *Phys. Rev. A*, 86, 023801 (2012).
- [Hioe1984] F. T. Hioe. Solution of bloch equations involving amplitude and frequency modulations. *Phys. Rev. A*, 30, 2100–2103 (1984).
- [Hocker1968] G. B. Hocker C. L. Tang. Observation of the optical transient nutation effect. *Phys. Rev. Lett.*, 21, 591–594 (1968).
- [Honda2008] K. Honda, D. Akamatsu, M. Arikawa, Y. Yokoi, K. Akiba, S. Nagatsuka, T. Tanimura, A. Furusawa, M. Kozuma. Storage and retrieval of a squeezed vacuum. *Phys. Rev. Lett.*, 100, 093601 (2008).
- [Hosseini2011a] M. Hosseini, G. Campbell, B. M. Sparkes, P. K. Lam, B. C. Buchler. Unconditional room-temperature quantum memory. *Nat Phys*, 7(10), 794–798 (2011).
- [Hosseini2011b] M. Hosseini, B. M. Sparkes, G. Campbell, P. K. Lam, B. C. Buchler. High efficiency coherent optical memory with warm rubidium vapour. *Nat Commun*, 2, 174 (2011).
- [Hosseini2012] M. Hosseini, B. M. Sparkes, G. T. Campbell, P. K. Lam, B. C. Buchler. Storage and manipulation of light using a raman gradient-echo process. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(12), 124004 (2012).
- [Hosseini2009] M. Hosseini, B. M. Sparkes, G. Hetet, J. J. Longdell, P. K. Lam, B. C. Buchler. Coherent optical pulse sequencer for quantum applications. *Nature*, 461(7261), 241–245 (2009).
- [Hunger2010] D. Hunger, S. Camerer, T. W. Hänsch, D. König, J. P. Kotthaus, J. Reichel, P. Treutlein. Resonant coupling of a bose-einstein condensate to a micromechanical oscillator. *Phys. Rev. Lett.*, 104, 143002 (2010).
- [Hutchings1964] M. Hutchings. Point-charge calculations of energy levels of magnetic ions in crystalline electric fields. volume 16 of *Solid State Physics* (pp. 227 – 273). Academic Press (1964).
- [Ichimura2006] K. Ichimura H. Goto. Normal-mode coupling of rare-earth-metal ions in a crystal to a macroscopic optical cavity mode. *Phys. Rev. A*, 74, 033818 (2006).
- [Jeffers1993] J. R. Jeffers, N. Imoto, R. Loudon. Quantum optics of traveling-wave attenuators and amplifiers. *Phys. Rev. A*, 47, 3346–3359 (1993).

- [Judd1977] B. R. Judd. Correlation crystal fields for lanthanide ions. *Phys. Rev. Lett.*, 39, 242–244 (1977).
- [Kaiser1961] W. Kaiser, S. Sugano, D. L. Wood. Splitting of the emission lines of ruby by an external electric field. *Phys. Rev. Lett.*, 6, 605–607 (1961).
- [Kalachev2012] A. Kalachev, X. Zhang, O. Kocharovskaya. Quantum storage via continuous phase-matching control. In *21th International Laser Physics Workshop (LPHYS'12)* (2012).
- [Kaplianski1987] A. Kaplianski R. Macfarlane. *Spectroscopy of solids containing rare earth ions*. Modern problems in condensed matter sciences. North-Holland (1987).
- [Kaplyanskii2002] A. Kaplyanskii. Linear stark effect in spectroscopy and luminescence of doped inorganic insulating crystals. *Journal of Luminescence*, 100(1-4), 21 – 34 (2002).
- [Kaviani2012] H. Kaviani, M. Khazali, K. Heshami, C. Simon. Detuning - change quantum memory. In *21th International Laser Physics Workshop (LPHYS'12)* (2012).
- [Kimble2008] H. J. Kimble. The quantum internet. *Nature*, 453(7198), 1023–1030 (2008).
- [Klappauf2004] B. G. Klappauf, Y. Bidel, D. Wilkowski, T. Chanelière, R. Kaiser. Detailed study of an efficient blue laser source by second-harmonic generation in a semi-monolithic cavity for the cooling of strontium atoms. *Appl. Opt.*, 43(12), 2510–2527 (2004).
- [Kopvillem1963] U. K. Kopvillem V. R. Nagibarov. Light echo on paramagnetic crystals. *Fiz. Metall. Metalloved.*, 15, 313 (1963).
- [Kraus2006] B. Kraus, W. Tittel, N. Gisin, M. Nilsson, S. Kröll, J. I. Cirac. Quantum memory for nonstationary light fields based on controlled reversible inhomogeneous broadening. *Phys. Rev. A*, 73, 020302 (2006).
- [Krishna Mohan2007] R. Krishna Mohan, T. Chang, M. Tian, S. Bekker, A. Olson, C. Ostrander, A. Khallaayoun, C. Dollinger, W. R. Babbitt, Z. Cole, R. R. Reibel, K. D. Merkel, Y. Sun, R. Cone, F. Schlottau, K. H. Wagner. Ultra-wideband spectral analysis using S2 technology. *J. Lumin.*, 127(1), 116 (2007).
- [Kubo2011] Y. Kubo, C. Grezes, A. Dewes, T. Umeda, J. Isoya, H. Sumiya, N. Morishita, H. Abe, S. Onoda, T. Ohshima, V. Jacques, A. Dréau, J.-F. Roch, I. Diniz, A. Auffeves, D. Vion, D. Esteve, P. Bertet. Hybrid quantum circuit with a superconducting qubit coupled to a spin ensemble. *Phys. Rev. Lett.*, 107, 220501 (2011).
- [Kubo2010] Y. Kubo, F. R. Ong, P. Bertet, D. Vion, V. Jacques, D. Zheng, A. Dréau, J.-F. Roch, A. Auffeves, F. Jelezko, J. Wrachtrup, M. F. Barthe, P. Bergonzo, D. Esteve. Strong coupling of a spin ensemble to a superconducting resonator. *Phys. Rev. Lett.*, 105, 140502 (2010).
- [Kurnit1964] N. A. Kurnit, I. D. Abella, S. R. Hartmann. Observation of a photon echo. *Phys. Rev. Lett.*, 13, 567–568 (1964).
- [Lambert1760] J. Lambert. *Photometria, sive de Mensura et gradibus luminis, colorum et umbrae*. sumptibus viduae E. Klett (1760).
- [Larionov1975] A. L. Larionov B. Z. Malkin. Effective hamiltonian of valence electrons of rare-earth elements in ionic crystals. *Optics and Spectroscopy*, 39(6), 637–639 (1975).

- [Lauritzen2010] B. Lauritzen, J. Minář, H. de Riedmatten, M. Afzelius, N. Sangouard, C. Simon, N. Gisin. Telecommunication-wavelength solid-state memory at the single photon level. *Phys. Rev. Lett.*, 104, 080502 (2010).
- [Lauro2010] R. Lauro. *Protocoles adiabatiques pour le ralentissement et le stockage de la lumière dans un cristal de Tm :YAG*. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, Laboratoire Aimé Cotton (2010).
- [Lauro2009a] R. Lauro, T. Chanelière, 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 (2009).
- [Lauro2009b] R. Lauro, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët. Spectral hole burning for stopping light. *Phys. Rev. A*, 79(5), 053801 (2009).
- [Lauro2011] R. Lauro, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët. Adiabatic refocusing of nuclear spins in Tm^{3+} :YAG. *Phys. Rev. B*, 83(3), 035124 (2011).
- [Lavielle2003] V. Lavielle, I. Lorgeré, J.-L. L. Gouët, S. Tonda, D. Dolfi. Wideband versatile radio-frequency spectrum analyzer. *Opt. Lett.*, 28(6), 384–386 (2003).
- [Leavitt1982] R. P. Leavitt, J. B. Gruber, N. C. Chang, C. A. Morrison. Optical spectra, energy levels, and crystal-field analysis of tripositive rare-earth ions in Y_2O_3 . ii. non-kramers ions in C_2 sites. *The Journal of Chemical Physics*, 76(10), 4775–4788 (1982).
- [Ledingham2012] P. M. Ledingham, W. R. Naylor, J. J. Longdell. Experimental realization of light with time separated correlations by rephasing amplified spontaneous emission. *arXiv/1205.0704* (2012).
- [Ledingham2010] P. M. Ledingham, W. R. Naylor, J. J. Longdell, S. E. Beavan, M. J. Sellars. Nonclassical photon streams using rephased amplified spontaneous emission. *Phys. Rev. A*, 81, 012301 (2010).
- [Li2008a] Y. Li, P. Hemmer, C. Kim, H. Zhang, L. Wang. Detection of ultrasound-modulated diffuse photons using spectral-hole burning. *Optics Express*, 16(19), 14862–14874 (2008).
- [Li2008b] Y. Li, H. Zhang, C. Kim, K. Wagner, P. Hemmer, L. Wang. Pulsed ultrasound-modulated optical tomography using spectral-hole burning as a narrowband spectral filter. *Appl. Phys. Lett.*, 93, 011111 (2008).
- [Liu2005] G. Liu B. Jacquier. *Spectroscopic properties of rare earths in optical materials*. Springer Verlag (2005).
- [Longdell2005] J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars, N. B. Manson. Stopped light with storage times greater than one second using electromagnetically induced transparency in a solid. *Phys. Rev. Lett.*, 95, 063601 (2005).
- [Longdell2008] J. J. Longdell, G. Hétet, P. K. Lam, M. J. Sellars. Analytic treatment of controlled reversible inhomogeneous broadening quantum memories for light using two-level atoms. *Phys. Rev. A*, 78, 032337 (2008).
- [Louchet2008] A. Louchet. *Manipulation optique d’une cohérence de spin nucléaire dans l’ion thulium en matrice cristalline*. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, Laboratoire Aimé Cotton (2008).
- [Louchet2007] A. Louchet, J. S. Habib, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Goldfarb, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, P. Goldner. Branching ratio measurement of a Λ system in Tm^{3+} :YAG under a magnetic field. *Phys. Rev. B*, 75(3), 035131 (2007).

- [Louchet-Chauvet2011] A. Louchet-Chauvet, R. Lauro, P. Goldner, F. Ramaz, T. Chanélie, J.-L. Le Gouët. High resolution, large dynamic range spectral filtering at 800 nm using Tm :YAG crystals. volume 7948 of *Proceedings of SPIE : SPIE*. Conference on Advances in Photonics of Quantum Computing, Memory, and Communication IV, San Francisco, CA, JAN 25-27, 2011 (2011).
- [Lukin2003] M. D. Lukin. *Colloquium* : Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles. *Rev. Mod. Phys.*, 75, 457–472 (2003).
- [Lvovsky2009] A. I. Lvovsky, B. C. Sanders, W. Tittel. Optical quantum memory. *Nat Photon*, 3(12), 706–714 (2009).
- [Macfarlane2007] R. M. Macfarlane. Optical stark spectroscopy of solids. *Journal of Luminescence*, 125(1-2), 156 – 174 (2007).
- [Manjón2004] F. J. Manjón, S. Jandl, G. Riou, B. Ferrand, K. Syassen. Effect of pressure on crystal-field transitions of Nd-doped YVO₄. *Phys. Rev. B*, 69, 165121 (2004).
- [Marquardt2009] F. Marquardt S. M. Girvin. Optomechanics. *Physics*, 2, 40 (2009).
- [Matsukevich2005] D. N. Matsukevich, T. Chanélie, M. Bhattacharya, S.-Y. Lan, S. D. Jenkins, T. A. B. Kennedy, A. Kuzmich. Entanglement of a photon and a collective atomic excitation. *Phys. Rev. Lett.*, 95(4), 040405 (2005).
- [Matsukevich2006] D. N. Matsukevich, T. Chanélie, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, A. Kuzmich. Entanglement of remote atomic qubits. *Phys. Rev. Lett.*, 96(3), 030405 (2006).
- [McAuslan2011a] D. L. McAuslan, D. Korystov, J. J. Longdell. Coherent spectroscopy of rare-earth-metal-ion-doped whispering-gallery-mode resonators. *Phys. Rev. A*, 83, 063847 (2011).
- [McAuslan2011b] D. L. McAuslan, P. M. Ledingham, W. R. Naylor, S. E. Beavan, M. P. Hedges, M. J. Sellars, J. J. Longdell. Photon-echo quantum memories in inhomogeneously broadened two-level atoms. *Phys. Rev. A*, 84, 022309 (2011).
- [McAuslan2009] D. L. McAuslan, J. J. Longdell, M. J. Sellars. Strong-coupling cavity qed using rare-earth-metal-ion dopants in monolithic resonators : What you can do with a weak oscillator. *Phys. Rev. A*, 80, 062307 (2009).
- [McCall1967] S. L. McCall E. L. Hahn. Self-induced transparency by pulsed coherent light. *Phys. Rev. Lett.*, 18, 908–911 (1967).
- [Ménager2001] L. Ménager, I. Lorgère, J.-L. Le Gouët, D. Dolfi, J.-P. Huignard. Demonstration of a radio-frequency spectrum analyzer based on spectral hole burning. *Opt. Lett.*, 26(16), 1245–1247 (2001).
- [Millo2009] J. Millo, D. V. Magalhães, C. Mandache, Y. Le Coq, E. M. L. English, P. G. Westergaard, J. Lodewyck, S. Bize, P. Lemonde, G. Santarelli. Ultrastable lasers based on vibration insensitive cavities. *Phys. Rev. A*, 79, 053829 (2009).
- [Moiseev2001] S. A. Moiseev S. Kröll. Complete reconstruction of the quantum state of a single-photon wave packet absorbed by a doppler-broadened transition. *Phys. Rev. Lett.*, 87, 173601 (2001).
- [Monchalín2009] J. Monchalín. Optical detection of ultrasound at a distance using a confocal Fabry–Perot interferometer. *Appl. Phys. Lett.*, 47(1), 14–16 (2009).
- [Mun2007] J. Mun, A. Jouini, A. Novoselov, Y. Guyot, A. Yoshikawa, H. Ohta, H. Shibata, Y. Waseda, G. Boulon, T. Fukuda. Growth and characterization of tm-doped y₂o₃ single crystals. *Optical Materials*, 29(11), 1390 – 1393 (2007).

- [Murray2004] T. Murray, L. Sui, G. Maguluri, R. Roy, A. Nieva, F. Blonigen, C. Di-Marzio. Detection of ultrasound-modulated photons in diffuse media using the photorefractive effect. *Opt. Lett.*, 29(21), 2509–2511 (2004).
- [Nazarova2006] T. Nazarova, F. Riehle, U. Sterr. Vibration-insensitive reference cavity for an ultra-narrow-linewidth laser. *Applied Physics B*, 83, 531–536 (2006).
- [Newman1971] D. Newman. Theory of lanthanide crystal fields. *Advances in Physics*, 20(84), 197–256 (1971).
- [Nilsson2005] M. Nilsson S. Kröll. Solid state quantum memory using complete absorption and re-emission of photons by tailored and externally controlled inhomogeneous absorption profiles. *Optics Communications*, 247(4-6), 393–403 (2005).
- [Notcutt2005] M. Notcutt, L.-S. Ma, J. Ye, J. L. Hall. Simple and compact 1-Hz laser system via an improved mounting configuration of a reference cavity. *Opt. Lett.*, 30(14), 1815–1817 (2005).
- [Nunn2007] J. Nunn, I. A. Walmsley, M. G. Raymer, K. Surmacz, F. C. Waldermann, Z. Wang, D. Jaksch. Mapping broadband single-photon wave packets into an atomic memory. *Phys. Rev. A*, 75, 011401 (2007).
- [Ohlsson2003] N. Ohlsson, M. Nilsson, S. Kröll, R. K. Mohan. Long-time-storage mechanism for Tm :YAG in a magnetic field. *Opt. Lett.*, 28(6), 450–452 (2003).
- [Pascual-Winter2012a] M. F. Pascual-Winter, R.-C. Tongning, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët. Spin coherence lifetime extension in Tm³⁺ :YAG through dynamical decoupling. *Phys. Rev. B*, 86, 184301 (2012).
- [Pascual-Winter2012b] M. F. Pascual-Winter, R. C. Tongning, R. Lauro, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët. Adiabatic passage with spin locking in Tm³⁺ :YAG. *Phys. Rev. B*, 86, 064301 (2012).
- [Pelusi2009] M. Pelusi, F. Luan, T. D. Vo, M. R. E. Lamont, S. J. Madden, D. A. Bulla, D.-Y. Choi, B. Luther-Davies, B. J. Eggleton. Photonic-chip-based radio-frequency spectrum analyser with terahertz bandwidth. *Nat Photon*, 3(3), 139–143 (2009).
- [Rabl2009] P. Rabl, P. Cappellaro, M. V. G. Dutt, L. Jiang, J. R. Maze, M. D. Lukin. Strong magnetic coupling between an electronic spin qubit and a mechanical resonator. *Phys. Rev. B*, 79, 041302 (2009).
- [Ramaz2004] F. Ramaz, B. Forget, M. Atlan, A. Boccara, M. Gross, P. Delaye, G. Roosen. Photorefractive detection of tagged photons in ultrasound modulated optical tomography of thick biological tissues. *Optics Express*, 12(22), 5469–5474 (2004).
- [Rebane2007] A. Rebane, R. Shakhmuratov, P. Mégret, J. Odeurs. Slow light with persistent spectral hole burning in waveguides. *Journal of Luminescence*, 127(1), 22 – 27 (2007).
- [Reim2011] K. F. Reim, P. Michelberger, K. C. Lee, J. Nunn, N. K. Langford, I. A. Walmsley. Single-photon-level quantum memory at room temperature. *Phys. Rev. Lett.*, 107, 053603 (2011).
- [Reim2012] K. F. Reim, J. Nunn, X.-M. Jin, P. S. Michelberger, T. F. M. Champion, D. G. England, K. C. Lee, W. S. Kolthammer, N. K. Langford, I. A. Walmsley. Multipulse addressing of a raman quantum memory : Configurable beam splitting and efficient readout. *Phys. Rev. Lett.*, 108, 263602 (2012).
- [Reim2010] K. F. Reim, J. Nunn, V. O. Lorenz, B. J. Sussman, K. C. Lee, N. K. Langford, D. Jaksch, I. A. Walmsley. Towards high-speed optical quantum memories. *Nat Photon*, 4(4), 218–221 (2010).

- [Rosen1932] N. Rosen C. Zener. Double stern-gerlach experiment and related collision phenomena. *Phys. Rev.*, 40, 502–507 (1932).
- [Rostovtsev2002] Y. Rostovtsev, Z. Sariyanni, M. Scully. Photon echo pulse shape storage. *Laser Physics*, 12(8), 1148–1154 (2002).
- [Ruggiero2010] J. Ruggiero, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët. Coherent response to optical excitation in a strongly absorbing rare-earth ion-doped crystal. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27(1), 32–37 (2010).
- [Ruggiero2009] J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, C. Simon, T. Chanelière. Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol. *Phys. Rev. A*, 79(5), 053851 (2009).
- [Sõnajalg1994] H. Sõnajalg P. Saari. Diffraction efficiency in space-and-time-domain holography. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11(2), 372–379 (1994).
- [S2Corporation2008] S2Corporation. *Vibration Measurements of Cryomech PT-405 Pulse Tube Cryocooler with S2 Corporation V2 Vibration Isolated Cryostat* (2008). S2Corporation, 2310 University Way, Building 4-1, Bozeman, MT 59715.
- [Saglamyurek2011] E. Saglamyurek, N. Sinclair, J. Jin, J. A. Slater, D. Oblak, F. Busières, M. George, R. Ricken, W. Sohler, W. Tittel. Broadband waveguide quantum memory for entangled photons. *Nature*, 469(7331), 512–515 (2011).
- [Sakadžić2004] S. Sakadžić L. V. Wang. High-resolution ultrasound-modulated optical tomography in biological tissues. *Opt. Lett.*, 29(23), 2770–2772 (2004).
- [Samartsev2010] V. Samartsev. Coherent optical spectroscopy of promising materials for solid-state optical processors. *Laser Physics*, 20, 383–446 (2010).
- [Sangouard2010] N. Sangouard, C. Simon, J. Minář, M. Afzelius, T. Chanelière, N. Gisin, J.-L. Le Gouët, H. de Riedmatten, W. Tittel. Impossibility of faithfully storing single photons with the three-pulse photon echo. *Phys. Rev. A*, 81(6), 062333 (2010).
- [Schuster2010] D. I. Schuster, A. P. Sears, E. Ginossar, L. DiCarlo, L. Frunzio, J. J. L. Morton, H. Wu, G. A. D. Briggs, B. B. Buckley, D. D. Awschalom, R. J. Schoelkopf. High-cooperativity coupling of electron-spin ensembles to superconducting cavities. *Phys. Rev. Lett.*, 105, 140501 (2010).
- [Sekatski2011] P. Sekatski, N. Sangouard, N. Gisin, H. de Riedmatten, M. Afzelius. Photon-pair source with controllable delay based on shaped inhomogeneous broadening of rare-earth-metal-doped solids. *Physical Review A*, 83(5), 1–7 (2011).
- [Shakhmuratov2005] R. N. Shakhmuratov, A. Rebane, P. Mégret, J. Odeurs. Slow light with persistent hole burning. *Phys. Rev. A*, 71, 053811 (2005).
- [Shelby1978] R. Shelby R. Macfarlane. Measurement of the pseudo-stark effect in $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ using population hole burning and optical free-induction decay. *Optics Communications*, 27(3), 399 – 402 (1978).
- [Silver1985] M. S. Silver, R. I. Joseph, D. I. Hoult. Selective spin inversion in nuclear magnetic resonance and coherent optics through an exact solution of the Bloch-Riccati equation. *Phys. Rev. A*, 31, 2753–2755 (1985).
- [Simon2010] C. Simon, M. Afzelius, J. Appel, A. Boyer de la Giroday, S. J. Dewhurst, N. Gisin, C. Y. Hu, F. Jelezko, S. Kröll, J. H. Müller, J. Nunn, E. S. Polzik, J. G. Rarity, H. De Riedmatten, W. Rosenfeld, A. J. Shields, N. Sköld, R. M. Stevenson, R. Thew, I. A. Walmsley, M. C. Weber, H. Weinfurter, J. Wrachtrup, R. J. Young. Quantum memories. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 58, 1–22 (2010).

- [Simon2007a] J. Simon, H. Tanji, S. Ghosh, V. Vuletić. Single-photon bus connecting spin-wave quantum memories. *Nat Phys*, 3(11), 765–769 (2007).
- [Simon2007b] J. Simon, H. Tanji, J. K. Thompson, V. Vuletić. Interfacing collective atomic excitations and single photons. *Phys. Rev. Lett.*, 98, 183601 (2007).
- [Slusher1974] R. Slusher. II self-induced transparency. volume 12 of *Progress in Optics* (pp. 53 – 100). Elsevier (1974).
- [Spano1988] F. C. Spano W. S. Warren. Preparation of constant-bandwidth total inversion, independent of optical density, with phase-modulated laser pulses. *Phys. Rev. A*, 37, 1013–1016 (1988).
- [Sparkes2012] B. M. Sparkes, M. Hosseini, C. Cairns, D. Higginbottom, G. T. Campbell, P. K. Lam, B. C. Buchler. Precision spectral manipulation : A demonstration using a coherent optical memory. *Phys. Rev. X*, 2, 021011 (2012).
- [Sparkes2010] B. M. Sparkes, M. Hosseini, G. Hétet, P. K. Lam, B. C. Buchler. ac stark gradient echo memory in cold atoms. *Phys. Rev. A*, 82, 043847 (2010).
- [Sun2000] Y. Sun, G. M. Wang, R. L. Cone, R. W. Equall, 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).
- [Surmacz2008] K. Surmacz, J. Nunn, K. Reim, K. C. Lee, V. O. Lorenz, B. Sussman, I. a. Walmsley, D. Jaksch. Efficient spatially resolved multimode quantum memory. *Physical Review A*, 78(3), 1–9 (2008).
- [Thompson2006] J. K. Thompson, J. Simon, H. Loh, V. Vuletić. A high-brightness source of narrowband, identical-photon pairs. *Science*, 313(5783), 74–77 (2006).
- [Thorpe2011] M. J. Thorpe, L. Rippe, T. M. Fortier, M. S. Kirchner, T. Rosenband. Frequency stabilization to 6×10^{-16} via spectral-hole burning. *Nat Photon*, 5(11), 688–693 (2011).
- [Tomaru2004] T. Tomaru, T. Suzuki, T. Haruyama, T. Shintomi, A. Yamamoto, T. Koyama, R. Li. Vibration analysis of cryocoolers. *Cryogenics*, 44(5), 309 – 317 (2004).
- [Tsang2003] L. Tsang, C. S. Cornish, 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(2), 379–390 (2003).
- [Turos-Matysiak2007] R. Turos-Matysiak, H. Zheng, J. Wang, W. Yen, R. Meltzer, T. Lukasiewicz, M. Świrkowicz, M. Grinberg. Pressure dependence of the 3P0 – 3H4 and 1D2 – 3H4 emission in $\text{Pr}^{3+}:\text{YAG}$. *Journal of Luminescence*, 122-123(0), 322 – 324 (2007).
- [Turukhin2001] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, P. R. Hemmer. Observation of ultraslow and stored light pulses in a solid. *Phys. Rev. Lett.*, 88, 023602 (2001).
- [Walls1995] D. F. Walls G. J. Milburn. *Quantum Optics*. Springer (1995).
- [Wang1995] L. Wang, S. Jacques, X. Zhao. Continuous-wave ultrasonic modulation of scattered laser light to image objects in turbid media. *Opt. Lett.*, 20(6), 629–631 (1995).
- [Wang1999] T. Wang, C. Greiner, J. R. Bochinski, T. W. Mossberg. Experimental study of photon-echo size in optically thick media. *Phys. Rev. A*, 60, R757–R760 (1999).

- [Wang1998] T. Wang, C. Greiner, T. Mossberg. Photon echo signals : beyond unit efficiency. *Optics Communications*, 153(4-6), 309–313 (1998).
- [Webster2007] S. A. Webster, M. Oxborrow, P. Gill. Vibration insensitive optical cavity. *Phys. Rev. A*, 75, 011801 (2007).
- [Wilkowski2004] D. Wilkowski, Y. Bidel, T. Chanelière, D. Delande, T. Jonckheere, B. Klappauf, G. Labeyrie, C. Miniatura, C. A. Müller, O. Sigwarth, R. Kaiser. Coherent backscattering of light by resonant atomic dipole transitions. *J. Opt. Soc. Am. B*, 21(1), 183–190 (2004).
- [Wilson-Rae2004] I. Wilson-Rae, P. Zoller, A. Imamoglu. Laser cooling of a nanomechanical resonator mode to its quantum ground state. *Phys. Rev. Lett.*, 92, 075507 (2004).
- [Young1999] B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano, J. C. Bergquist. Visible lasers with subhertz linewidths. *Phys. Rev. Lett.*, 82, 3799–3802 (1999).
- [Zhao2009] R. Zhao, Y. O. Dudin, S. D. Jenkins, C. J. Campbell, D. N. Matsukevich, T. A. B. Kennedy, A. Kuzmich. Long-lived quantum memory. *Nat Phys*, 5(2), 100–104 (2009).
- [Zhou2012] Z.-Q. Zhou, W.-B. Lin, M. Yang, C.-F. Li, G.-C. Guo. Realization of reliable solid-state quantum memory for photonic polarization qubit. *Phys. Rev. Lett.*, 108, 190505 (2012).