Modèles d'interaction radiation-matière en milieu résonnant

B. Bidégaray
Laboratoire de Modélisation et de Calcul, CNRS UMR 5523
Tour IRMA, B.P. 53, 38041 Grenoble Cedex 9
Brigitte.Bidegaray@imag.fr

Abstract

La description semi-classique de l'interaction radiation-matière dans un contexte résonnant utilise le modèle de Maxwell-Bloch. Nous décrivons dans cet article quelques avancées récentes en modélisation tant physique que numérique qui permettent d'aborder la simulation d'une plus grande variété de phénomènes physiques. La maîtrise de ce modèle permet d'une part d'envisager d'aborder des modèles encore plus complexes, mais aussi de justifier rigoureusement l'utilisation de certains modèles simplifiés.

1 Introduction

Les intensités et les temps d'impulsion accessibles par les lasers nécessitent un modèle semi-classique pour la description de l'interaction radiation-matière. Étant donné l'importance des phénomènes transitoires, un modèle classique mais dans le domaine temporel sert à décrire la propagation du champ. Les phénomènes d'interaction sont d'autant plus importants que la fréquence de l'onde incidente est en rapport avec une fréquence propre du matériau. On parle alors de milieu résonnant. Pour rendre compte de ces fréquences propres, le seul effet du milieu sur l'onde ne suffit plus (comme dans les modèles classiques) et un modèle quantique est requis pour la description de l'évolution du matériau.

Le modèle le plus précis dans ce contexte est alors le modèle de Maxwell-Bloch. Ce modèle ne suppose pas d'hypothèses *a priori* sur la forme des solutions. En fonction du paramétrage du milieu et de l'onde, on peut ainsi traiter de multiples applications (dont nous donnerons des exemples au paragraphe 3.3) et combiner plusieurs effets. Néanmoins son utilisation dans des codes de calcul scientifique est restreint à des dispositifs de petites tailles.

Cependant dans certaines configurations expérimentales des modèles beaucoup plus grossiers sont utilisés. Bien souvent, on se contente de sélectionner une ou plusieurs fréquences d'intérêt et *modulo* quelques hypothèses supplémentaires, le modèle le plus couramment obtenu est celui de Schrödinger non-linéaire.

De nombreux autres modèles intermédiaires émaillent la littérature (modèle de Lorentz, équations de taux, ...). Nous nous intéressons ici plus particulièrement au modèle de Maxwell-Bloch. Les seules équations de Bloch peuvent déjà susciter des problématiques aussi bien du point de vue théorique que numérique, que nous présentons dans la section 2. Nous traitons dans la section 3 le couplage avec les équations de Maxwell ainsi que des applications. Enfin, la dernière section est consacrée aux conclusions et aux nombreuses perspectives dans la complexification de ce modèle ainsi que dans la justification de modèles simplifiés.

© **Non Linaire Publications**, Bât.510, Université de Paris-sud, 91405 Orsay

2 Équations de Bloch

2.1 Le modèle

La dérivation des équations de Bloch peut se trouver dans de nombreux ouvrages (par exemple [5, 8, 9, 10, 11]). Celles-ci décrivent l'évolution temporelle d'une observable appelée matrice densité :

$$\partial_t \rho_{nm} = \overbrace{-i\omega_{nm}\rho_{nm} - i\mathbf{E}(t)\cdot[\mu,\rho]_{nm}}^{\text{mécanique quantique}} \quad \overbrace{+Q(\rho)_{nm}}^{\text{phénoménologique}}$$

Dans cette description on suppose que le matériau est bien décrit par ses N premiers états propres. Les termes diagonaux de la matrice ρ_{nn} décrivent la population d'un niveau n, $1 \leq n \leq N$, donné. Les termes extra-diagonaux representent la cohérence entre deux niveaux.

Le premier terme du second membre provient de l'hamiltonien non perturbé du système qui est caractérisé par la fréquence de transition $\omega_{nm} = \omega_n - \omega_m$ entre deux niveaux.

Le deuxième terme provient de l'effet d'un champ électromagnétique sur le système. Nous considérons dans cette section que le champ $\mathbf{E}(t)$ est donné. Le moment dipolaire, $\mu = \mathbf{p}/\hbar$, est une matrice à valeurs vectorielle qui décrit l'aptitude d'une transition à générer une polarisation dans chacune des directions. Enfin, $[\mu,\rho] = \mu\rho - \rho\mu$ est un commutateur et $Q(\rho)$ un terme de relaxation phénoménologique qui provient de nombreuses sources (mélange statistique, collisions, vibrations, ...) et est l'objet du paragraphe suivant.

2.2 Les termes de relaxation

Tous les modèles de la littérature s'accordent sur la forme des termes de relaxation transverse (i.e. affectant les cohérences) :

$$Q(\rho)_{nm} = -\gamma_{nm}\rho_{nm}, \text{ avec } \gamma_{nm} = \gamma_{mn}.$$

En revanche, plusieurs modèles de relaxation longitudiale (qui affecte les populations) sont présents dans la littérature physique. Leurs mérites relatifs ne sont jamais étudiés. Nous avons décidé (voir [3, 4]) de les comparer du point de vue de la bonne modélisation de l'émission spontanée et de la conservation de la trace (la somme des population doit valoir 1). Cette étude distingue le modèle de l'équation maîtresse de Pauli

$$Q(\rho)_{nn} = \sum_{m\neq n} W_{nm}\rho_{mm} - \sum_{m\neq n} W_{mn}\rho_{nn}, \qquad \Gamma_n = \sum_{m\neq n} W_{mn},$$

dont les états d'équilibres ($Q(\rho) = 0$) sont imposés par la relation

$$W_{nm} = W_{mn} e^{\hbar(\omega_m - \omega_n)/\kappa T}.$$

Pour de plus préserver au cours du temps des propriétés de positivité ($\rho_{nn} \in [0,1]$, $|\rho_{nm}|^2 \leq \rho_{nn}\rho_{mm}$, ρ opérateur positif), il faut imposer des conditions sur les coefficients. Pour les deux premières propriétés, on peut trouver des conditions nécessaires et suffisantes qui sont toujours vérifiées dans les exemples physiques :

$$\gamma_{nm} \geq 0, \qquad W_{nm} \geq 0, \qquad 2\gamma_{nm} \geq \Gamma_n + \Gamma_m - \sqrt{W_{nm}W_{nm}}.$$

Pour la dernière condition, on peut faire l'hypothèse (très restrictive mais à nouveau toujours proposée dans les modèles physiques) que γ_{nm} est de la forme

$$\gamma_{nm} = \frac{1}{2}(\Gamma_n + \Gamma_m) + \gamma_n^{coll} + \gamma_m^{coll},$$

auquel cas il suffit de vérifier que $\gamma_n^{coll} \geq 0$.

2.3 Enjeux numériques

Les seuls travaux numériques préxistant à cette étude est un code Maxwell-Bloch mono- ou bi-dmensionnnel à deux niveaux d'énergie ($N = 2$) [13]. Le schéma utilisé pour les équations de Bloch est celui de Crank-Nicolson. Il conserve la trace en théorie mais pas en pratique (erreurs cumulées des points fixes). Par ailleurs, il ne préserve pas les propriétés de positivité pour plus de deux niveaux. C'est pourquoi, nous proposons un schéma de splitting [4] qui pallie ces défauts.

3 Modèle de Maxwell-Bloch

3.1 Le modèle

On ne suppose maintenant plus que le champ $\mathbf{E}(t)$ est donné, mais qu'il est solution des équations de Maxwell :

$$\begin{aligned} \varepsilon_0\varepsilon_\infty \partial_t \mathbf{E} &= \frac{1}{\mu_0}\text{rot } \mathbf{B} - \partial_t \mathbf{P}, \\ \partial_t \mathbf{B} &= -\text{rot } \mathbf{E}. \end{aligned}$$

Le couplage avec les équations de Bloch est réalisé par l'expression de la polarisation

$$\mathbf{P} = Na\text{Tr}(\mathbf{p}\rho),$$

et l'espace joue le rôle d'un paramètre *via* $\mathbf{E}(\mathbf{x}, t)$ dans les équations de Bloch.

Se pose alors le problème d'existence et d'unicité de solutions au système de Maxwell-Bloch. Une réponse positive est donné dans [2] pour des temps courts. Le problème en temps long est ouvert et semble receler de nombreuses difficultés algébriques et analytiques. La dérivation rigoureuse de modèles asymptotiques pour des applications particulières est également un vaste problème sur lequel nous reviendrons à la section 4.

3.2 Enjeux numériques

Pour obtenir un code efficace, on utilise dans [13] une méthode de différences finies (due à Yee [12]) dont le point important est qu'il utilise des grilles de discrétisation décalées en temps et en espace pour $\mathbf{E}$ et $\mathbf{B}$. Le schéma de splittting pour les équations de Bloch permet de conserver ces avantages (bien mieux que le schéma de Crank-Nicolson) à condition de choisir judicieusement la grille de discrétisation de la matrice densité [1]. On obtient alors un code explicite, parallélisable en grande partie et facilement modulable pour l'appliquer à différentes circonstances dont nous donnons des exemples ci-après.

3.3 Applications

Nous présentons ici quelques applications possibles de ce type de modèle. On peut en imaginer bien d'autres : cavités laser, diffusion Brillouin, ...

3.3.1 Transparence auto-induite

La transparence auto-induite est un phénomène qui se décrit très bien avec l'équation de Schrödinger cubique, il ne nécessite donc pas de modèle quantique. Il est intéressant de voir qu'il se retrouve dans ce modèle plus complet. Il s'agit de vérifier qu'une onde (dont le profil correspond au soliton de Schrödinger cubique) traverse un milieu sans être modifiée pendant que le milieu subit un nombre entier d'inversions totales. Ce cas test permet de quantifier les performances d'un schéma sans être pollué par les problèmes de positivité puisqu'il ne fait intervenir que deux niveaux.

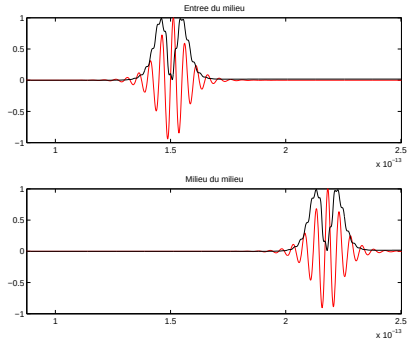

Figure 1: Transparence auto-induite : évolution temporele de $\mathbf{E}$ et ρ_{11}. L'onde se propage sans modification.

3.3.2 Transfert de cohérence

A l'opposé du cas test précédent, le transfert de cohérence est un cas test typiquement quantique qui nécessite de modéliser les cohérences (ce que ne font pas des équations de taux, par exemple). Comme son nom l'indique, il s'agit de considérer une cohérence initialement installée entre les niveaux 1 et 2 (par exemple) pour la transférer entre les niveaux 2 et 3.

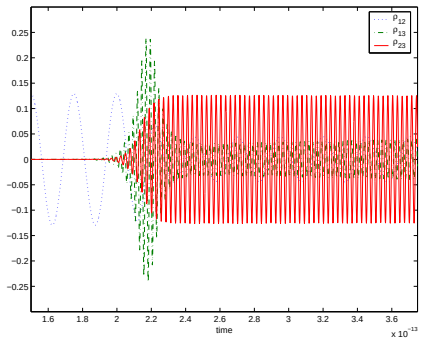

Figure 2: Transfert de cohérence : évolution temporelle des cohérences.

3.3.3 Doublage de fréquence

Pour les premiers bancs d'essai d'un code multi-dimensionnel, on peut essayer de créer une fréquence double dans une polarisation différente de la polarisation incidente. Ce cas test passe sans problème avec l'apparition bien sûr également d'un phénomène de rectification optique.

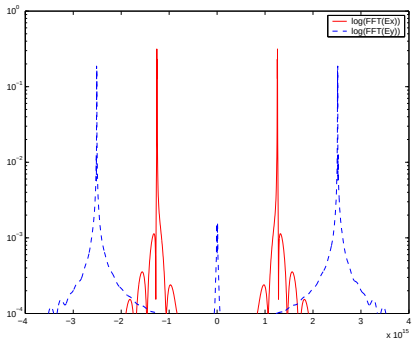

Figure 3: Doublage de fréquence : fréquence double et rectification dans une autre polarisation.

3.3.4 Diffusion Raman

Enfin, on peut regarder des cas tests peut être plus intéressants pour les applications, par exemple la diffusion Raman. Pour réaliser le cas test présent en rendant compte des différents pics avec des couplages d'équations de Schrödinger, il faudrait la bagatelle de 14 équations de Schrödinger non linéaires, avec le risque d'oublier un phénomène (Raman multiples, Raman sur la fréquence triple).

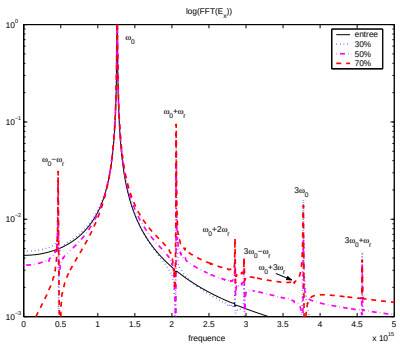

Figure 4: Diffusion Raman : fréquences apparues (diffusions simples, multiples, triplage de fréquence) en différents points du milieu.

4 Conclusion

Nous avons donné un cadre théorique pour le modèle de Maxwell-Bloch dans des milieux isotropes. Ceci a permis d'élaborer des schémas numériques dédiés qui ouvrent la voie vers des applications physiques diverses. La bonne maîtrise de ce modèle permet d'envisager de

le rendre plus complexe, pour par exemple rendre compte d'anisotropies dans des cristaux. Ceci nécessite de nouvelles avancées avec l'introduction de la prise en compte minimale de niveaux dégénérées (algèbre et chimie quantique) et la parallélisation effective des codes.

Pour les applications à l'optique, les discrétisations spatiale et temporelle est trop fine par rapport à la taille de la plupart des dispositifs pour rendre ce modèle pleinement efficace. On peut cependant l'utiliser soit pour valider des modèles plus grossiers soit dans des contextes où les matériaux sont petits. C'est le cas par exemple de la caractérisation de boîtes quantiques dans des semi-conducteurs. Il faut alors enrichir l'étude de l'effet d'aléas sur des phénomènes résonnants. Par ailleurs, la résolution des équations de Maxwell-Bloch constitue un problème direct auquel il faudrait associer un problème inverse et une méthode numérique d'identification de paramètres.

Un autre programme ambitieux est la dérivation rigoureuse de modèles asymptotiques qui pourrait être assortie de vérifications numériques des limites de validité des codes et nécessite donc un code Maxwell-Bloch performant. Une première approche dans ce sens est présentée dans [6, 7] et permet, sous l'hypothèse de faible inversion, de dériver une équatiion de Schrödinger non-linéaire à partir du modèle de Maxwell-Bloch à deux niveaux. Les phénomènes fortement résonnants sortent typiquement du cadre de ce type d'asymptotique, ce qui laisse un large champ pour des développements ultérieurs.

References

[1] B. Bidégaray, *Time discretizations for Maxwell-Bloch equations,* prépublication MIP 00.44 (2000), soumis à Numerical Methods for Partial Differential Equations.

[2] B. Bidégaray, *Contributions à l'électromagnétisme dans le domaine temporel. Modélisation classique et quantique en optique non linéaire,* Habilitation à diriger des recherches de l'Université Paul Sabatier (2001).

[3] B. Bidégaray, *De Maxwell-Bloch à Schrödinger non linéaire : une hiérarchie de modèles en optique quantique,* Cours Post-DEA, Université Paris-Orsay (2001).

[4] B. Bidégaray, A. Bourgeade, D. Reignier, *Introducing physical relaxation terms in Bloch equations,* J. Comput. Phys., **170**, 603-613, (2001).

[5] R.W. Boyd, *Nonlinear Optics.* Academic Press (1992).

[6] J.-L. Joly, G. Métivier, J. Rauch, *Optique géométrique non linéaire et équations de Maxwell-Bloch,* Séminaire de l'École Polytechnique (1999).

[7] J.-L. Joly, G. Métivier, J. Rauch, *Transparent nonlinear geometric optics and Maxwell-Bloch equations,* J. Differ. Equations, **166**, 175-250, (2000).

[8] J.R. Lalanne, A. Ducasse, S. Kielich, *Interaction laser-molécule – Physique du laser et optique non linéaire moléculaire,* Polytechnica (1994).

[9] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light,* Oxford Science Publications (1983).

[10] R.H. Pantell, H.E. Puthoff, *Electronique quantique en vue des applications,* Dunod (1973).

[11] Y.R. Shen, *The Priciples of Nonlinear Optics,* Wiley (1984).

[12] K.S. Yee, *Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations,* IEEE Trans. Anten. Propagat., **14**, 302-307, (1966).

[13] R.W. Ziolkowski, J.M. Arnold, D.M. Gogny, *Ultrafast pulse interaction with two-level atoms.* Phys. Rev. A, **52**, 3082-3094, (1995).