

## Modèle physique

La matière de ce chapitre peut se trouver dans différents livres qui traitent d'optique quantique comme ceux de R.W. Boyd [3], J.R. Lalanne, A. Ducasse et S. Kielich [17], R. Loudon [18], R.H. Pantell et H.E. Puthoff [20], M.O. Scully et M.S. Zubairy [23] ou Y.R. Shen [24], cette liste ne prétendant pas à l'exhaustivité. Dans ces références, la dérivation n'est présentée parfois que dans le cas d'atomes à deux niveaux d'énergie.

### 2.1 Les équations de Bloch

#### 2.1.1 Vecteur d'état, équation de Schrödinger

La variable qui permet de décrire un système en mécanique quantique est le vecteur d'état  $\psi$ . Pour simplifier les écritures, nous allons adopter la notation de Dirac, dans laquelle on définit deux vecteurs bra  $\langle\psi|$  et ket  $|\psi\rangle$ . De manière générale, le produit scalaire  $\langle\psi_1|\psi_2\rangle$  représente l'intégrale  $\int \psi_1^* \psi_2 \, d\mathbf{r}$ , où  $*$  désigne le complexe conjugué et  $\mathbf{r}$  le vecteur position local. On normalise le vecteur d'état par la convention  $\langle\psi|\psi\rangle = 1$ . L'évolution temporelle du vecteur  $|\psi\rangle$  est régie par l'équation de Schrödinger

$$i\hbar\partial_t|\psi\rangle = \mathcal{H}|\psi\rangle . \quad (2.1)$$

Si le système est non perturbé alors l'hamiltonien  $\mathcal{H}$  se résume à un hamiltonien non perturbé, noté  $\mathcal{H}_0$ . Les perturbations extérieures au système induisent une modification de l'hamiltonien qui se traduit par une contribution supplémentaire, dite hamiltonien d'interaction  $\mathcal{V}$  et ainsi  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{V}$ .

La détermination du vecteur d'état est d'une part impossible car ce n'est pas un observable au sens quantique du terme et il n'est donc pas accessible à la mesure expérimentale. Par ailleurs, elle n'est pas nécessaire pour l'explication des phénomènes physiques observés. En revanche, l'hamiltonien non perturbé peut être décrit par ses éléments propres : les vecteurs propres

sont les états quantiques  $|j\rangle$  et les valeurs propres associées sont les niveaux d'énergie  $\mathcal{E}_j = \hbar\omega_j$ . On dispose alors de dispositifs expérimentaux permettant de déterminer les niveaux d'énergie jusqu'à une certaine précision. C'est pourquoi on recherche des modèles ne faisant intervenir que ces énergies sans nécessiter de connaissance des états propres. Dans cette optique, on projette habituellement l'équation de Schrödinger (2.1) sur la base orthonormée des états propres  $|j\rangle$ , donnant ainsi la décomposition unique  $|\psi\rangle = \sum a_j |j\rangle$  et l'équation d'évolution pour les coefficients dans cette base

$$i\hbar\partial_t a_j = \sum_k a_k \langle j|\mathcal{H}|k\rangle, \quad (2.2)$$

car  $\langle j|\sum_k a_k |k\rangle = a_j \langle j|j\rangle = a_j$ .

### 2.1.2 Formalisme de la matrice densité

Les coefficients  $a_j$  ne sont pas plus observables que le vecteur  $|\psi\rangle$ . C'est pourquoi, on introduit un observable qui est la matrice densité  $\rho$ . Une description au niveau microscopique de la matière consisterait à choisir un unique électron comme système, auquel cas la matrice densité est définie par  $\rho = |\psi\rangle\langle\psi|$ . Mais, en général, on n'a pas accès à un unique électron mais à un certain nombre (de l'ordre de 10 ou 100) de systèmes microscopiques tous localisés dans une petite portion d'espace que l'on appelle la sphère de Lorentz. Le modèle devient alors mésoscopique et la matrice densité est définie par  $\rho = \sum_S p_S |\psi^S\rangle\langle\psi^S|$  où  $S$  est un ensemble statistique et  $p_S$  la probabilité pour les systèmes microscopiques constituant le système mésoscopique d'être caractérisés par la fonction  $\psi^S$ .

*Remarque 2.1.* L'introduction de cette probabilité est due à un manque de connaissance du système et ne doit pas être confondue avec la probabilité de présence  $\rho_{jj}$  définie ci-dessous (cf. R.H. Pantell et H.E. Puthoff [20]).

En utilisant la décomposition sur la base des états propres  $|j\rangle$ , on obtient

$$\rho_{jk} = \sum_S p_S a_j^S a_k^{S*}. \quad (2.3)$$

Sous l'hypothèse que la statistique est stationnaire, l'évolution temporelle de la matrice  $\rho$  est alors régie par l'équation de Liouville

$$i\hbar\partial_t \rho = [\mathcal{H}, \rho], \quad (2.4)$$

où  $[\cdot, \cdot]$  désigne le commutateur de deux opérateurs, à savoir

$$[\mathcal{H}, \rho] = \mathcal{H}\rho - \rho\mathcal{H}.$$

Le terme de matrice a été utilisé de manière impropre dans la mesure où il y a un nombre infini de niveaux. On se restreint en pratique à un nombre

fini de niveaux en ne gardant que ceux qui interviennent dans le phénomène considéré. Pour cela, on remarque que la trace de  $\rho$  est égale à 1 :

$$\begin{aligned}\text{Tr}\rho &= \sum_k \langle k|\rho|k\rangle = \sum_{k,S} p_S \langle k|\psi^S\rangle \langle \psi^S|k\rangle = \sum_{k,S} p_S \langle \psi^S|k\rangle \langle k|\psi^S\rangle \\ &= \sum_S p_S \langle \psi^S|\text{Id}|\psi^S\rangle = \sum_S p_S \langle \psi^S|\psi^S\rangle = \sum_S p_S = 1.\end{aligned}$$

On garde un nombre  $N$  de niveaux qui continue à assurer que  $\text{Tr}\rho = 1$  et la matrice  $\rho$  devient une matrice de dimension  $N \times N$ . On peut donner une interprétation des coefficients de cette matrice. Ses éléments diagonaux sont appelés *populations*. La population du niveau  $j$  (c'est-à-dire  $\rho_{jj}$ ) est la probabilité de présence du système dans l'état  $|j\rangle$ . Les termes extra-diagonaux sont appelés *cohérences*. La cohérence  $\rho_{jk}$  entre les niveaux  $j$  et  $k$  est un nombre complexe. Son module peut être interprété comme une probabilité conditionnelle de transition entre les niveaux  $j$  et  $k$ , conditionnée par le fait que ces niveaux soient peuplés.

*Moyenne d'un observable.*

Cette matrice densité sert en particulier à exprimer la valeur moyenne d'un observable  $O$

$$\langle O \rangle = \text{Tr}(\rho O).$$

Deux cas particuliers de la valeur moyenne nous intéressent ici. La propriété de trace vue ci-dessus calcule la moyenne de l'opérateur identité  $\langle \text{Id} \rangle = 1$ . La polarisation est également la moyenne associée au moment dipolaire électrique (cf. paragraphe 2.2.2).

### 2.1.3 L'approximation dipolaire électrique

Il nous faut maintenant décrire l'hamiltonien d'interaction  $\mathcal{V}$ . Celui-ci est dû à la présence d'un champ électromagnétique extérieur au système considéré. Dans notre contexte, nous nous restreignons aux moments dipolaires électriques, qui dominent les moments d'ordre supérieurs. On fait l'hypothèse que le champ électrique macroscopique  $\mathbf{E}$  varie peu à l'échelle de l'atome (et même à l'échelle de la sphère de Lorentz). Ainsi, le champ  $\mathbf{E}$  dépend d'un vecteur position macroscopique  $\mathbf{R}$ , et on peut écrire la perturbation d'interaction sous la forme

$$\mathcal{V}(\mathbf{R}, t) = -e\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) \cdot \mathbf{r}$$

où  $e$  est la charge de l'électron et  $\mathbf{r}$  le vecteur position local. On note  $\mathbf{p}$  l'opérateur dipolaire électrique défini par  $\mathbf{p} = e\mathbf{r}$ , d'où

$$\mathcal{V}(\mathbf{R}, t) = -\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) \cdot \mathbf{p}.$$

A l'ordre supérieur, l'hamiltonien d'interaction s'écrit

$$\begin{aligned} \mathcal{V}(\mathbf{R}, t) = & -\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) \cdot \mathbf{p} - \underline{\underline{q}} : \nabla \mathbf{E}(\mathbf{R}, t) \\ & - \frac{e}{2m_e c} \mathbf{H}(\mathbf{R}, t) \cdot \mathbf{l} + \frac{e^2}{8m_e c^2} \mathbf{r} \wedge \mathbf{H}(\mathbf{R}, t) , \end{aligned}$$

où  $\underline{\underline{q}} = e\mathbf{r}\mathbf{r}/2$  est l'opérateur quadrupolaire électrique,  $\mathbf{l} = \mathbf{r} \wedge \mathbf{p}_0$  est le moment orbital,  $\mathbf{p}_0$  étant l'impulsion du système non perturbé,  $m_e$  la masse de l'électron et  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide. Dans le premier terme, on reconnaît l'approximation dipolaire électrique. Le deuxième terme est l'approximation quadrupolaire électrique. Les deux derniers termes sont respectivement les termes paramagnétique et diamagnétique et font intervenir le champ magnétique  $\mathbf{H}$ .

#### 2.1.4 Les équations de Bloch

La base  $|j\rangle$  a été choisie de telle manière que la quantité  $[\mathcal{H}_0, \rho]_{jk}$  soit simple. L'expression de l'opérateur dipolaire électrique  $\mathbf{p}$  dans cette base est une matrice appelée matrice des moments dipolaires, à valeur vectorielle, que l'on note également  $\mathbf{p}$ . Ses coefficients sont  $\mathbf{p}_{jk} = \langle k|\mathbf{p}|j\rangle$  et permettent de donner également une forme agréable à l'expression  $[\mathcal{V}, \rho]_{jk}$ . On a alors

$$\begin{aligned} \partial_t \rho_{jk} = & -\frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}_0, \rho]_{jk} - \frac{i}{\hbar} [\mathcal{V}, \rho]_{jk} \\ = & -\frac{i}{\hbar} (\mathcal{E}_j \rho_{jk} - \rho_{jk} \mathcal{E}_k) + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E} \cdot [\mathbf{p}, \rho]_{jk} \\ = & -i(\omega_j - \omega_k) \rho_{jk} + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E} \cdot [\mathbf{p}, \rho]_{jk} . \end{aligned}$$

De plus, on note  $\omega_{jk} = \omega_j - \omega_k$ , la fréquence associée à la transition du niveau  $k$  vers le niveau  $j$ . On obtient alors la forme brute des équations de Bloch

$$\partial_t \rho_{jk} = -i\omega_{jk} \rho_{jk} + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E} \cdot [\mathbf{p}, \rho]_{jk} , \quad (2.5)$$

dans laquelle on remarque qu'il n'est plus nécessaire de connaître les états propres  $|j\rangle$ .

Dans les cas où il n'est pas nécessaire de distinguer les rôles de  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{p}$ , comme la dérivation des équations de taux (cf. chapitre 5) ou l'écriture de schémas numériques pour les équations de Bloch (cf. chapitre 8), on notera  $V = \mathbf{E} \cdot \mathbf{p}/\hbar$  pour alléger les écritures, cette notation étant choisie car  $V$  joue plus ou moins le rôle d'un potentiel dans l'équation de Bloch.

#### 2.1.5 Symétries, propriétés de positivité

##### Matrice densité

La construction des matrices  $\rho$  et  $\mathbf{p}$  induit immédiatement certaines propriétés de symétrie. On déduit d'abord de l'expression (2.3) que  $\rho$  est hermitienne positive. En effet, si  $X = {}^t(X_1 \dots X_n)$  est un vecteur de  $\mathbb{C}^N$  alors

$$\begin{aligned}
{}^tX\rho X &= \sum_{jk} X_j^* \left( \sum_S p_S a_j^S a_k^{S*} \right) X_k = \sum_S p_S \sum_{jk} X_j^* a_j^S a_k^{S*} X_k \\
&= \sum_S p_S \|Y\|_{\mathbb{C}^N}^2 \geq 0
\end{aligned}$$

avec  $Y_j = X_j^* a_j^S$ . Deux sous-cas de cette propriété sont particulièrement intéressants. Si  $X$  a tous ses coefficients nuls sauf le  $j$ ème, alors ceci nous donne que  $\rho_{jj} \geq 0$ . Le fait que la trace de  $\rho$  vaut 1 donne alors que, pour tout  $j$ ,  $0 \leq \rho_{jj} \leq 1$ , ce qui est raisonnable pour une probabilité. Un autre cas particulier est fourni dans le cas où seuls les  $j$ ème et  $k$ ème coefficients sont non nuls. On obtient alors  $|\rho_{jk}|^2 \leq \rho_{jj}\rho_{kk}$ . Ceci veut dire que la cohérence entre deux niveaux est majorée par les populations respectives de ces deux niveaux.

Ces propriétés sont dérivées de la formule (2.3) et, si l'on peut préparer la donnée initiale de l'équation de Bloch sous cette forme, rien ne permet d'affirmer que la solution aura cette forme à tout temps  $t$ . Reconstruire cette forme reviendrait même à dire que  $a_j$  est un observable, ce qui est faux. En pratique, on perd les informations sur les phases en passant au formalisme de la matrice densité.

La forme hamiltonienne des équations de Bloch (2.5) permet néanmoins d'assurer que les propriétés sont conservées au cours du temps. La manière la plus simple de montrer ceci est de remarquer que la solution de l'équation de Bloch (2.5) est

$$\rho(t) = \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \int_0^t \mathcal{H}(\tau) d\tau\right) \rho(0) \exp\left(\frac{i}{\hbar} \int_0^t \mathcal{H}(\tau) d\tau\right).$$

(Cette forme sera également utilisée pour la dérivation des schémas numériques au chapitre 8). On a alors

$${}^tX\rho(t)X = {}^tY\rho(0)Y \text{ avec } Y = \exp\left(\frac{i}{\hbar} \int_0^t \mathcal{H}(\tau) d\tau\right) X.$$

L'ajout de termes de relaxation qui est l'objet du paragraphe 2.1.6 ne permettra pas de vérifier automatiquement cette propriété et ce problème sera analysé au paragraphe 3.2.

### Matrice des moments dipolaires

La matrice  $\mathbf{p}$  est également hermitienne par construction. La parité de  $\mathbf{r}$  implique que si  $|j\rangle$  et  $|k\rangle$  sont de même parité alors le coefficient  $\mathbf{p}_{jk}$  est nul. En particulier, les éléments diagonaux  $\mathbf{p}_{jj}$  sont tous nuls. Pour les mêmes raisons, il est impossible dans un matériau centro-symétrique que les coefficients  $\mathbf{p}_{12}$ ,  $\mathbf{p}_{13}$  et  $\mathbf{p}_{23}$  soient tous non nuls.

### 2.1.6 Modèles de relaxation

#### Pourquoi introduire des termes de relaxation ?

Lors de la dérivation de l'équation de Liouville, nous avons supposé que la statistique était stationnaire. Non seulement cela n'est pas le cas mais en plus il n'y a aucune façon d'accéder à cette statistique. Il nous faut donc traiter cette approximation de manière phénoménologique et ceci se traduit par un terme de type relaxation dans les équations de Bloch. D'autres phénomènes donnent lieu à des termes de relaxation tels que les collisions et les perturbations thermiques (dans des fluides), les vibrations dans les réseaux cristallins, etc. L'introduction de ces relaxations a aussi l'avantage de permettre de modéliser l'émission spontanée, ce qui est impossible avec le modèle brut de Bloch (2.5). On écrit donc

$$\partial_t \rho_{jk} = -i\omega_{jk}\rho_{jk} + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E} \cdot [\mathbf{p}, \rho]_{jk} + Q(\rho)_{jk} . \quad (2.6)$$

Il existe différents modèles de relaxation dans la littérature physique mais pas de terminologie pour les distinguer. La terminologie donnée ici n'est donc pas classique. Si parfois deux modèles coexistent dans une référence, leurs liens rigoureux, voire les limites de validité, ne sont jamais donnés. C'est pourquoi la détermination d'un bon modèle de relaxation est nécessaire.

On appelle *relaxations transverses* les termes affectant les cohérences  $Q(\rho)_{jk}$  avec  $j \neq k$ , et *relaxations longitudinales* ceux qui affectent les populations  $Q(\rho)_{jj}$ . Parmi les phénomènes cités ci-dessus, certains ne donnent de contribution qu'aux relaxations transverses (comme les collisions) alors que d'autres donnent lieu à des relaxations des deux types. Physiquement, les relaxations transverses dominent les relaxations longitudinales, et ce souvent de plusieurs ordres de grandeur.

#### Relaxations transverses

La complexité des phénomènes entrant en jeu dans les relaxations transverses est telle que le modèle choisi pour ces termes est paradoxalement plus simple car plus phénoménologique que ceux introduits pour les relaxations longitudinales. Ainsi, pour  $j \neq k$ , on introduit le taux de relaxation  $\gamma_{jk} > 0$  et  $Q(\rho)_{jk}$  s'écrit

$$Q(\rho)_{jk} = -\gamma_{jk}\rho_{jk} .$$

En l'absence de champ électromagnétique, on a

$$\partial_t \rho_{jk} = -(i\omega_{jk} + \gamma_{jk})\rho_{jk}$$

et ainsi  $\lim_{t \rightarrow +\infty} \rho_{jk}(t) = 0$ . Les cohérences ont un état d'équilibre nul. Par ailleurs, il est clair que le caractère hermitien de la matrice densité ne peut être assuré que si  $\gamma_{jk} = \gamma_{kj}$ .

### Relaxations longitudinales — Modèle uni-niveau

Un modèle très largement présent dans la littérature [3, 12, 18, 24] est celui que nous appelons *uni-niveau* puisqu'il ne fait intervenir qu'un seul niveau :

$$Q(\rho)_{jj} = -\gamma_{jj}(\rho_{jj} - \rho_{jj}^e), \quad (2.7)$$

où  $\rho_{jj}^e$  est l'état d'équilibre du niveau  $j$ .

La solution de l'équation  $\partial_t \rho_{jj} = Q(\rho)_{jj}$  (évolution sans champ électromagnétique) est alors

$$\rho_{jj}(t) = e^{-\gamma_{jj}t} \rho_{jj}(0) + \int_0^t e^{-\gamma_{jj}(t-\tau)} \gamma_{jj} \rho_{jj}^e(\tau) d\tau,$$

ce qui donne pour trace

$$\text{Tr}(\rho(t)) = \sum_j \left( e^{-\gamma_{jj}t} \rho_{jj}(0) + \int_0^t e^{-\gamma_{jj}(t-\tau)} \gamma_{jj} \rho_{jj}^e(\tau) d\tau \right).$$

Les seules solutions pour assurer la conservation de la trace sont alors de choisir tous les taux de relaxation  $\gamma_{jj}$  égaux ou de faire dépendre les états d'équilibre du temps. Ces deux solutions sont peu physiques.

Si ce modèle décrit bien le phénomène de dépeuplement d'un niveau lorsque celui-ci est trop peuplé par rapport à son état d'équilibre, il décrit moins bien la situation inverse (qui est réalisée pour au moins un niveau si le système n'est pas à l'équilibre). En effet, le peuplement est alors fonction de la population des autres niveaux et de l'intensité de l'onde électromagnétique excitatrice et non de la population du niveau considéré (cf. équations de taux, chapitre 5). Ce défaut est pallié par les modèles qui suivent.

### Relaxations longitudinales — Modèle en cascade

Un modèle plus précis consiste ainsi à faire dépendre les apports à un niveau de la population des autres niveaux. On écrit donc le modèle *en cascade*, décrit par exemple dans [3, 25],

$$Q(\rho)_{jj} = \sum_{l>j} \Gamma_{jl}(\rho_{ll} - \rho_{ll}^e) - \sum_{l<j} \Gamma_{lj}(\rho_{jj} - \rho_{jj}^e).$$

Pour que ce modèle soit cohérent, il faut que l'état d'équilibre soit solution de  $Q(\rho^e) = 0$ . On trouve aussi souvent une formulation dont on a supprimé les états d'équilibre pour écrire

$$Q(\rho)_{jj} = \sum_{l>j} \Gamma_{jl} \rho_{ll} - \sum_{l<j} \Gamma_{lj} \rho_{jj} = \sum_{l>j} \Gamma_{jl} \rho_{ll} - \Gamma_j \rho_{jj}. \quad (2.8)$$

On voit alors que ce modèle n'autorise que des relaxations vers le niveau inférieur, d'où le nom que nous lui avons donné. Ici  $\Gamma_{jk}$  est le taux de relaxation du niveau  $l$  vers le niveau  $j$  et  $\Gamma_j = \sum_{l<j} \Gamma_{lj}$  est le taux de relaxation *global* du niveau  $j$ .

La cohérence de ce modèle sera étudiée à la lumière du modèle suivant.

### Relaxations longitudinales — Modèle de l'équation maîtresse de Pauli

Il restait pour être complet à autoriser les transitions vers des niveaux supérieurs. Ceci donne lieu au *modèle de l'équation maîtresse de Pauli*

$$Q(\rho)_{jj} = \sum_{l \neq j} W_{jl} \rho_{ll} - \sum_{l \neq j} W_{lj} \rho_{jj} = \sum_{l \neq j} W_{jl} \rho_{ll} - \Gamma_j \rho_{jj} , \quad (2.9)$$

où maintenant  $\Gamma_j = \sum_{l \neq j} W_{lj}$ . On peut trouver ce modèle dans [2, 5, 9, 20, 24].

L'état d'équilibre, qui n'apparaît pas explicitement, est en fait caché dans la relation entre les taux de relaxation

$$W_{jl} = W_{lj} e^{\beta(\mathcal{E}_l - \mathcal{E}_j)} , \quad (2.10)$$

où  $\beta = 1/\kappa T$ , et  $\kappa$  est la constante de Boltzmann et  $T$  la température. L'état d'équilibre vérifie alors pour tout  $j$

$$\begin{aligned} 0 &= \sum_{l \neq j} W_{jl} \rho_{ll}^e - \sum_{l \neq j} W_{lj} \rho_{jj}^e = \sum_{l \neq j} W_{lj} \left( \rho_{ll}^e e^{\beta(\mathcal{E}_l - \mathcal{E}_j)} - \rho_{jj}^e \right) \\ &= \sum_{l \neq j} W_{lj} \left( \rho_{ll}^e e^{\beta \mathcal{E}_l} - \rho_{jj}^e e^{\beta \mathcal{E}_j} \right) . \end{aligned}$$

Il suffit alors de prendre tous les  $\rho_{jj}^e e^{\beta \mathcal{E}_j}$  égaux et d'utiliser la contrainte  $\text{Tr}(\rho^e) = 1$  pour obtenir

$$\rho_{jj}^e = \frac{e^{-\beta \mathcal{E}_j}}{\sum_l e^{-\beta \mathcal{E}_l}} .$$

D'après l'équation (2.10), le modèle en cascade peut alors être interprété comme une version à température nulle du modèle de l'équation maîtresse de Pauli. Le seul état d'équilibre alors possible est celui où l'état fondamental est entièrement peuplé. Étant donné les valeurs numériques typiques des taux de relaxation et les temps sur lesquels on regarde les phénomènes, la notion de température nulle est plutôt une température pas trop élevée, typiquement inférieure à la température ambiante.

Ce qui précède suppose implicitement l'unicité de l'état d'équilibre. Ce point est discuté ultérieurement (cf. paragraphe 5.4) dans le cadre plus général des équations de taux.

S'il est important de comparer les différents modèles de relaxation d'un point de vue théorique pour aboutir au meilleur modèle possible, ceci peut être d'un intérêt pratique parfois moindre. En effet, une grande partie des cas tests numériques que nous avons effectués concernent des régimes purement transitoires et sont très peu sensibles au modèle de relaxation longitudinale utilisé car celui-ci correspond à une constante de temps grande devant la durée de ces régimes transitoires. Néanmoins, nous pouvons discriminer ces modèles (cf. paragraphe 3.2) du point de vue de leurs propriétés physiques et mathématiques.

## 2.2 Le système de Maxwell–Bloch

### 2.2.1 Équations de Maxwell

Nous considérons les équations de Maxwell macroscopiques sous l'hypothèse de l'absence de charges et de courants de charge :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \partial_t \mathbf{B} = -\text{rot } \mathbf{E} , & (\text{Faraday}) \\ \partial_t \mathbf{D} = \text{rot } \mathbf{H} , & (\text{Ampère}) \\ \nabla \cdot \mathbf{B} = 0 , & (\text{Gauss}) \\ \nabla \cdot \mathbf{D} = 0 . & (\text{Poisson}) \end{array} \right. \quad (2.11)$$

Ces équations doivent être fermées par des lois constitutives qui dépendent du matériau. Dans les milieux qui nous intéressent la partie magnétique ne donne pas lieu à un phénomène particulier et le déplacement magnétique  $\mathbf{B}$  s'exprime simplement en fonction du champ magnétique par  $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ , où  $\mu_0$  est la perméabilité du vide. En revanche, on écrit de manière classique le déplacement électrique  $\mathbf{D}$  en fonction du champ électrique et de la polarisation  $\mathbf{P}$  dont l'expression peut être complexe :  $\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \mathbf{E} + \mathbf{P}$  où  $\varepsilon_0$  est la permittivité du vide et  $\varepsilon_\infty$  est la permittivité relative à fréquence infinie. Ainsi, la polarisation constitue une perturbation de la loi constitutive par rapport à la loi linéaire à fréquence infinie. Cette polarisation traduit l'influence du matériau sur le champ électromagnétique. En pratique, l'équation d'Ampère se réécrit

$$\varepsilon_0 \varepsilon_\infty \partial_t \mathbf{E} = \frac{1}{\mu_0} \text{rot } \mathbf{B} - \mathbf{J} , \text{ avec } \mathbf{J} = \partial_t \mathbf{P} ,$$

que l'on peut multiplier par  $\mu_0$  pour faire apparaître la vitesse de la lumière dans le matériau à la fréquence infinie  $c_\infty = c/\sqrt{\varepsilon_\infty}$  :

$$\frac{1}{c_\infty^2} \partial_t \mathbf{E} = \text{rot } \mathbf{B} - \mu_0 \mathbf{J} .$$

La fermeture de ce système est réalisée à travers l'expression de la polarisation  $\mathbf{P}$  ou de la densité de courant  $\mathbf{J}$ , ce qui est équivalent du point de vue des équations continues (et nous utiliserons  $\mathbf{P}$  et  $\partial_t \mathbf{P}$  dans ce contexte). Cette expression est donnée au paragraphe 2.2.2 pour obtenir le système de Maxwell–Bloch et au chapitre 6 pour les systèmes de Maxwell–Debye et Maxwell–Lorentz.

Le choix de discrétiser  $\mathbf{P}$  ou  $\mathbf{J}$  peut en revanche s'avérer crucial lors de la réalisation de schémas numériques (cf. chapitres 10 et 11).

### 2.2.2 Couplage via la polarisation

La polarisation qui intervient dans l'expression des lois constitutives du milieu pour fermer les équations de Maxwell est l'expression macroscopique de l'opérateur microscopique  $\mathbf{p}$ . A ce titre, elle s'exprime sous la forme

$$\mathbf{P} = N_a \text{Tr}(\mathbf{p}\rho) = N_a \langle \mathbf{p} \rangle ,$$

où  $N_a$  est la densité volumique des éléments actifs.

### 2.2.3 Modes de polarisation de l'onde

Il convient de ne pas confondre le vecteur polarisation  $\mathbf{P}$  avec la polarisation de l'onde électromagnétique. On considère en effet souvent que les inconnues du problème ne dépendent que d'une ou de deux variables d'espace. Dans ces deux cas, le système de Maxwell se découple en deux polarisations appelées respectivement transverse électrique (TE) et transverse magnétique (TM) qui peuvent néanmoins rester liées via l'expression de la polarisation  $\mathbf{P}$ , voire de la permittivité relative  $\varepsilon_\infty$  si celle-ci est un tenseur non diagonal dans cette base (voir la conclusion). On suppose dans ce paragraphe que  $\varepsilon_\infty$  est scalaire.

### Équations de Maxwell unidimensionnelles

Le cadre unidimensionnel est celui de la totalité des résultats numériques présentés dans cet ouvrage. On suppose que les inconnues ne dépendent que de la variable d'espace  $z$ . On peut alors séparer les modes TE et TM qui vérifient respectivement les équations

$$\left\{ \begin{array}{l} \partial_t B_x - \partial_z E_y = 0 , \\ \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \partial_t E_y - \frac{1}{\mu_0} \partial_z B_x = -J_y , \\ J_y = \partial_t P_y , \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \partial_t B_y + \partial_z E_x = 0 , \\ \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \partial_t E_x + \frac{1}{\mu_0} \partial_z B_y = -J_x , \\ J_x = \partial_t P_x , \end{array} \right.$$

alors que d'autres équations

$$\left\{ \begin{array}{l} \partial_t B_z = 0 , \\ \partial_z B_z = 0 , \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \partial_t E_z = -J_z , \\ J_z = \partial_t P_z , \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \partial_z E_z = \rho_c , \\ \rho_c = -\partial_z P_z , \end{array} \right.$$

ne nécessitent pas de calcul particulier. Dans ce contexte unidimensionnel, on fait généralement (sauf dans un de nos cas test de génération de seconde harmonique) l'hypothèse supplémentaire que  $\mathbf{p} = (p_x, 0, 0)$ . Ceci impose aussi la direction de  $\mathbf{P} = (P_x, 0, 0)$  et ainsi seul le système

$$\left\{ \begin{array}{l} \partial_t B_y + \partial_z E_x = 0 , \\ \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \partial_t E_x + \frac{1}{\mu_0} \partial_z B_y = -J_x , \\ J_x = \partial_t P_x , \end{array} \right.$$

doit être étudié. On simplifie alors les notations en posant  $E = E_x$ ,  $B = B_y$ ,  $P = P_x$ ,  $J = J_x$  et  $p = p_x$ .

### Équations de Maxwell bidimensionnelles

La littérature présente certaines simulations bidimensionnelles [21, 27]. Comme le but est alors d'exhiber des phénomènes multidimensionnels, il n'est plus possible de faire la deuxième hypothèse et  $\mathbf{p}$  a a priori plusieurs coordonnées non nulles. On suppose néanmoins que la dépendance spatiale des inconnues est en  $x$  et en  $y$ . Ceci découple également le système et en posant  $\vec{E} = (E_x, E_y)$  et  $E = E_z$  ainsi que des notations similaires pour les autres inconnues, on écrit deux systèmes découplés régissant les modes  $TE_z$  et  $TM_z$  respectivement :

$$\left\{ \begin{array}{l} \partial_t B + \text{rot } \vec{E} = 0, \\ \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \partial_t \vec{E} - \frac{1}{\mu_0} \overrightarrow{\text{rot}} B = -\vec{J}, \\ \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \rho_c, \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \partial_t \vec{B} + \overrightarrow{\text{rot}} E = 0, \\ \varepsilon_0 \varepsilon_\infty \partial_t E - \frac{1}{\mu_0} \text{rot } \vec{B} = -J, \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \end{array} \right.$$

où  $\text{rot } \vec{V} = -\partial_y V_x + \partial_x V_y$  et  $\overrightarrow{\text{rot}} \phi = (\partial_y \phi, -\partial_x \phi)$ . On clôt le système grâce aux relations  $\vec{J} = \partial_t \vec{P}$ ,  $J = \partial_t P$  et  $\rho_c = -\vec{\nabla} \cdot \vec{P}$ .

Ces deux systèmes sont couplés par les polarisations  $\vec{P} = N_a \text{Tr}(\vec{p}\rho)$  et  $P = N_a \text{Tr}(p\rho)$  qui font toutes deux intervenir la matrice densité  $\rho$  dont le calcul utilise  $\vec{E}$  et  $E$ .

## 2.3 Modèle à deux niveaux d'énergie

Le cas des atomes à deux niveaux d'énergie est celui le plus largement traité dans la littérature, voire le seul cas envisagé dans nombre de références. On utilise alors classiquement d'autres variables pour les équations de Bloch et donc une autre expression du couplage.

### 2.3.1 Variables de Bloch à deux niveaux

Dans la mesure où  $\rho_{11} + \rho_{22}$  vaut toujours 1, il est inutile de considérer les populations séparément. Seule la valeur de  $\rho_{22} - \rho_{11}$  peut suffire à reconstruire les deux grandeurs. Malheureusement, ce type de variable est aussi souvent utilisé avec des modèles de relaxation qui ne garantissent pas la conservation de la trace (par exemple, on prend  $\gamma_{11} = 0$  (réservoir à l'état fondamental) et  $\gamma_{22} \neq 0$  (état excité)). Dans le cas de la conservation, on a clairement  $Q(\rho)_{11} = -Q(\rho)_{22}$ , ainsi

$$\partial_t(\rho_{22} - \rho_{11}) = \frac{2i\mathbf{E}}{\hbar} \cdot (\mathbf{p}_{21}\rho_{12} - \mathbf{p}_{12}\rho_{21}) + 2Q(\rho)_{22}. \quad (2.12)$$

De même, comme la matrice  $\rho$  est hermitienne, il n'y a qu'une seule cohérence à calculer, laquelle est régie par l'équation

$$\partial_t \rho_{12} = -(\gamma_{12} + i\omega_{12})\rho_{12} + \frac{i\mathbf{E}}{\hbar} \cdot \mathbf{p}_{12}(\rho_{22} - \rho_{11}). \quad (2.13)$$

### 2.3.2 Couplage via la polarisation

L'expression de la polarisation se simplifie en

$$\mathbf{P} = N_a(\mathbf{p}_{21}\rho_{12} + \mathbf{p}_{12}\rho_{21}) . \quad (2.14)$$

### 2.3.3 Un modèle unidimensionnel

Au vu des équations (2.12)–(2.13)–(2.14), il est clair qu'écrire un modèle à deux niveaux est écrire un modèle unidimensionnel. En effet, le champ  $\mathbf{E}$  n'apparaît dans les équations de Bloch qu'à travers la quantité  $\mathbf{E} \cdot \mathbf{p}_{12}$ . Le matériau ne “voit” que la composante du champ  $\mathbf{E}$  selon la direction du vecteur  $\mathbf{p}_{12}$ . Par ailleurs, la polarisation  $\mathbf{P}$  est créée dans la direction de ce même vecteur. Dans le plan vectoriel orthogonal à  $\mathbf{p}_{12}$ , les champs  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{B}$  sont donc régis par les équations de Maxwell classiques (pas de couplage avec le milieu). Le modèle de Maxwell–Bloch n'est donc utile que dans la direction de  $\mathbf{p}_{12}$ .

### Dérivation d'équations sans phase

Notons  $p_{12}$  le module de  $\mathbf{p}_{12}$  et  $\vartheta$  son argument. Si on multiplie l'équation (2.13) par  $\exp(-i\vartheta)$  et l'on note  $E$  la composante de  $\mathbf{E}$  selon  $\mathbf{p}_{12}$ , on obtient

$$\partial_t \rho_{12} \exp(-i\vartheta) = -(\gamma_{12} + i\omega_{12})\rho_{12} \exp(-i\vartheta) + \frac{iEp_{12}}{\hbar}(\rho_{22} - \rho_{11}) .$$

En outre, les équations (2.12) et (2.14) peuvent s'écrire

$$\begin{aligned} \partial_t(\rho_{22} - \rho_{11}) &= \frac{2iEp_{12}}{\hbar}(\rho_{12} \exp(-i\vartheta) - \rho_{21} \exp(i\vartheta)) + 2Q(\rho)_{22} , \\ P &= N_a p_{12}(\rho_{12} \exp(-i\vartheta) + \rho_{21} \exp(i\vartheta)) . \end{aligned}$$

On remarque que les équations de Bloch et la polarisation s'écrivent en n'utilisant que deux variables, le nombre d'inversion

$$\mathcal{N} = N_a(\rho_{22} - \rho_{11}) ,$$

et l'amplitude dipolaire

$$\mathcal{A} = N_a \rho_{12} p_{12} \exp(-i\vartheta) .$$

Si on refait les mêmes calculs que précédemment en autorisant le champ  $E$  à être complexe (ce dans l'optique des développements asymptotiques, cf. chapitre 7), on obtient les équations de Bloch à deux niveaux

$$\begin{aligned} \partial_t \mathcal{A} &= -(\gamma_{12} + i\omega_{12})\mathcal{A} + \frac{iEp_{12}^2}{\hbar}\mathcal{N} , \\ \partial_t \mathcal{N} &= \frac{2i}{\hbar}(E^* \mathcal{A} - E \mathcal{A}^*) + Q(\mathcal{N}) , \end{aligned}$$

où  $Q(\mathcal{N}) = N_a(W_{21} - W_{12}) - (W_{12} + W_{21})\mathcal{N}$ . On remarque que la phase de  $\mathbf{p}_{12}$  a complètement disparu des équations. Le couplage via la polarisation s'écrit alors

$$P = 2 \operatorname{Re}(\mathcal{A}) .$$

### Équations à deux niveaux classiques

Plus classiquement, les équations à deux niveaux sont écrites en utilisant la variable  $\mathcal{P}$  telle que  $\mathcal{A} = p_{12}\mathcal{P}$ , on obtient ainsi

$$\partial_t \mathcal{P} = -(\gamma_{12} + i\omega_{12})\mathcal{P} + \frac{iEp_{12}}{\hbar}\mathcal{N} , \quad (2.15)$$

$$\partial_t \mathcal{N} = \frac{2ip_{12}}{\hbar}(E^*\mathcal{P} - E\mathcal{P}^*) + Q(\mathcal{N}) , \quad (2.16)$$

et

$$P = 2p_{12} \operatorname{Re}(\mathcal{P}) .$$

Ce changement de variables confère une certaine symétrie au système.

### Modèle sans relaxation

Reprenons les équations (2.15)–(2.16) pour les atomes à deux niveaux. On se place à l'échelle de temps des variations du champ, que l'on suppose beaucoup plus rapide que les phénomènes de relaxation. On suppose de plus que le champ est réel. On a alors les équations simplifiées

$$\partial_t \mathcal{P} = -i\omega_{12}\mathcal{P} + \frac{iEp_{12}}{\hbar}\mathcal{N} , \quad (2.17)$$

$$\partial_t \mathcal{N} = \frac{2ip_{12}}{\hbar}E(\mathcal{P} - \mathcal{P}^*) . \quad (2.18)$$

En dérivant par rapport au temps, on trouve

$$\begin{aligned} \partial_t^2 \mathcal{P} + \omega_{12}^2 \mathcal{P} &= \frac{E\omega_{12}p_{12}}{\hbar}\mathcal{N} + \frac{i\partial_t E p_{12}}{\hbar}\mathcal{N} - 2\frac{E^2 p_{12}^2}{\hbar^2}(\mathcal{P} - \mathcal{P}^*) , \\ \partial_t^2 \mathcal{N} + \left(\frac{2Ep_{12}}{\hbar}\right)^2 \mathcal{N} &= \frac{2ip_{12}}{\hbar}\partial_t E(\mathcal{P} - \mathcal{P}^*) + \frac{2\omega_{12}p_{12}}{\hbar}E(\mathcal{P} + \mathcal{P}^*) . \end{aligned}$$

On trouve alors des équations qui ressemblent au modèle de Lorentz que nous verrons au chapitre 6.

Hiérarchie de modèles en optique quantique

De Maxwell-Bloch à Schrödinger non-linéaire

Bidegaray-Fesquet, B.

2006, XIV, 172 p. 21 ill., Softcover

ISBN: 978-3-540-27238-0