



**HAL**  
open science

# Propagation d'impulsion laser ultracourtes dans un cristal non linéaire

Olivier Saut, Antoine Bourgeade

► **To cite this version:**

Olivier Saut, Antoine Bourgeade. Propagation d'impulsion laser ultracourtes dans un cristal non linéaire. 2007. hal-00128697

**HAL Id: hal-00128697**

**<https://hal.science/hal-00128697>**

Preprint submitted on 2 Feb 2007

**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.

## PROPAGATION D'IMPULSIONS LASER ULTRACOURTES DANS UN CRISTAL NON LINÉAIRE.

OLIVIER SAUT<sup>1</sup> AND ANTOINE BOURGEADE<sup>2</sup>

**Abstract.** In this paper, we present a mathematical model for ultrashort pulses propagation in nonlinear optical crystals. For ultrashort pulses, classical models based on the slowly varying envelope approximation are no longer relevant. The microscopic model based on the Maxwell-Bloch model, that we present, can accurately describe the wave-propagation while accounting for dispersive nonlinearities. We will describe this model and its numerical discretization in two dimensions of space. Finally, we perform two numerical experiments.

**Résumé.** Dans cet article, nous présentons un modèle mathématique pour l'étude de la propagation d'impulsions ultra-courtes dans les cristaux non-linéaires. Pour des impulsions ultra-courtes, les modèles classiques basés sur l'approximation de l'enveloppe lentement variable ne sont plus adaptés. Nous décrivons un modèle microscopique basé sur les équations de Maxwell-Bloch qui peut décrire précisément l'interaction lumière-matière en tenant compte de la dispersion de la réponse non-linéaire du milieu à la lumière. Un schéma numérique adapté sera ensuite décrit. Nous finirons par quelques expériences numériques.

**Mathematics Subject Classification.** 78A60, 81V80.

### INTRODUCTION

Les sources lasers modernes sont capables de produire des impulsions de plus en plus courtes. Des durées de l'ordre de quelques femto-secondes ( $10^{-15}$ s) peuvent désormais être atteintes. Pour de telles impulsions, l'hypothèse d'enveloppe lentement variable, qui est à la base de nombreux modèles macroscopiques en optique non-linéaire, n'est plus valide. C'est par exemple le cas des modèles basés sur des équations de Schrödinger non-linéaires qui sont couramment utilisés. Pour pouvoir étudier précisément la propagation de ces impulsions courtes, il est donc nécessaire de développer de nouveaux modèles mathématiques. Dans cet article, nous allons présenter un modèle semi-classique adapté à l'étude de la propagation d'impulsions courtes. Dans ce modèle, la lumière est modélisée au niveau classique et la matière au niveau quantique.

Nous nous intéressons en particulier à la propagation de faisceaux laser dans des cristaux optiques non-linéaires. Dans ces cristaux, la réponse non-linéaire du matériau au passage de l'onde ne peut pas être négligée et peut modifier fortement l'impulsion lumineuse. Ces cristaux ont de nombreuses applications pratiques et quotidiennes comme par exemple pour la conversion de fréquence.

---

*Keywords and phrases.* Impulsions ultra-courtes. Interaction laser-matière. Équations de Maxwell-Bloch.

<sup>1</sup> Institut de Mathématiques Appliquées de Bordeaux, Université Bordeaux 1, CNRS UMR 5251 and INRIA Futurs, 351 cours de la libération, 33405 Talence Cedex, France

<sup>2</sup> CEA/CESTA, B.P. 2, 33114 Le Barp, France

Dans de nombreux modèles macroscopiques, on modélise la réponse d'un matériau à une impulsion lumineuse à l'aide d'un terme de polarisation qui perturbe la propagation. Cette polarisation est décomposée en somme de puissances du champ électrique dont on ne retient généralement que les ordres linéaire et quadratique (ce qui ne permet pas de rendre compte de l'effet de saturation). Les coefficients de ce développement sont appelés les *susceptibilités optiques*. En toute généralité, ces coefficients dépendent du spectre de l'onde incidente. Cependant, pour des impulsions longues, cette dépendance est fréquemment négligée : la réponse du matériau au passage de l'onde est la même pour toutes les fréquences.

Pour des impulsions courtes, la largeur du spectre de l'impulsion impose de considérer la dépendance fréquentielle des susceptibilités optiques. L'ajout d'une dispersion de la linéarité est classique [9]. Cependant, l'ajout d'une non-linéarité quadratique à un modèle de Maxwell non-linéaire n'est pas une tâche aisée [2,3].

Dans [1], nous avons développé un modèle plus adapté pour la propagation d'impulsions ultra-courtes dans un cristal non-linéaire. Ce modèle semi-classique est basé sur les équations de Maxwell-Bloch. Les équations de Maxwell décrivent le comportement de la lumière au niveau macroscopique tandis que l'évolution du cristal est décrite au niveau quantique par les équations de Bloch. La polarisation, qui décrit l'interaction lumière-matière, est calculée à partir de grandeurs microscopiques du cristal et tient compte de la dispersion de toutes les non-linéarités (en particulier on n'utilise plus un développement en puissance du champ électrique).

Le plan de cet article est le suivant. Dans la section 1, nous présenterons plus en détail le modèle de Maxwell-Bloch [1]. Dans la section 2, nous décrirons un schéma numérique développé pour étudier ce modèle en dimension deux d'espace. Enfin, dans la section 3, nous présenterons quelques simulations numériques montrant la précision du modèle.

## 1. PRÉSENTATION DU MODÈLE CONSIDÉRÉ

Décrivons à présent le modèle de Maxwell-Bloch. Dans ce modèle semi-classique, le faisceau laser est décrit au niveau macroscopique par les équations de Maxwell, c'est l'objet de la section 1.1. Le cristal est modélisé au niveau quantique comme on le verra dans la section 1.2. Il est donc nécessaire de disposer d'informations sur la structure quantique du cristal, ce qui n'est pas immédiat comme on le verra dans la section 1.3.

### 1.1. Description de la lumière

Dans la suite, une impulsion lumineuse sera décrite par le couple de l'induction électrique et du champ magnétique ( $\mathbf{D}, \mathbf{H}$ ). Les équations de Maxwell décrivant l'évolution de l'onde électromagnétique sont

$$\begin{cases} \mu_0 \partial_t \mathbf{H} = -\nabla \times \mathbf{E}, \\ \partial_t \mathbf{D} = \nabla \times \mathbf{H}, \\ \nabla \cdot \mathbf{D} = 0, \\ \nabla \cdot \mathbf{H} = 0, \end{cases} \quad (1)$$

où  $\mathbf{E}$  est le champ électrique et  $\mu_0$  la perméabilité du vide. Le champ  $\mathbf{E}$  est relié à l'induction  $\mathbf{D}$  par l'équation

$$\mathbf{D} = \varepsilon \mathbf{E} + \mathbf{P}, \quad (2)$$

où  $\varepsilon$  est le tenseur statique de susceptibilité et  $\mathbf{P}$  la polarisation qui décrit l'interaction avec le cristal.

Les deux relations  $\nabla \cdot \mathbf{D} = 0$  et  $\nabla \cdot \mathbf{H} = 0$  ne jouent aucun rôle dans la suite.

Désormais nous nous plaçons en deux dimensions d'espace. L'axe  $z$  est dans la direction de propagation de la lumière et l'axe  $y$  dans la direction transverse. Les équations (1) se réécrivent

$$\begin{cases} \mu_0 \partial_t H_x &= -\partial_y E_z + \partial_z E_y, \\ \mu_0 \partial_t H_y &= -\partial_z E_x, \\ \mu_0 \partial_t H_z &= \partial_y E_x, \\ \partial_t D_x &= \partial_y H_z - \partial_z H_y, \\ \partial_t D_y &= \partial_z H_x, \\ \partial_t D_z &= -\partial_y H_x. \end{cases} \quad (3)$$

Une propriété importante des cristaux uni-axes (que nous considérons ici) est que l'on peut choisir l'axe  $y$  de façon à annuler quatre coefficients de la matrice  $\varepsilon$  (plus précisément  $\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yx} = \varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zy} = 0$ ) [2]. Dans la suite, nous allons supposer que ce choix a été fait puisqu'il simplifie la discrétisation.

## 1.2. Description de la matière

Il nous reste à décrire la réponse du cristal à l'impulsion laser. Nous allons modéliser chaque molécule du cristal comme un atome (ou un petit groupe d'atomes isolés) avec un unique électron ayant  $N$  niveaux d'énergie discrets. Cet atome réagit à la lumière comme un dipôle quantique. On verra que malgré cette simplification, le modèle décrit assez précisément l'interaction lumière-matière.

Un électron  $a$ , en l'absence d'impulsion lumineuse,  $N$  niveaux d'énergie (éventuellement dégénérés) avec des énergies correspondantes que nous allons noter  $\mathcal{E}_i = \hbar\omega_i$ ,  $i = 1..N$ . Pour chaque énergie, nous choisissons une fonction propre  $\phi_i$  de l'hamiltonien libre  $H_0$  de l'atome. Nous faisons l'hypothèse que l'état quantique  $\psi$  de l'électron soumis au laser est une combinaison linéaire des fonctions propres de l'électron isolé (hypothèse de faible interaction).

Comme un grand nombre d'atomes interagit avec la lumière, nous allons utiliser une description statistique plutôt que le formalisme des fonctions d'ondes. Pour cela, nous définissons la *matrice densité*  $\rho$  par  $(\rho_{rs})_{1 \leq r, s \leq N} = \langle \psi_r | \psi_s \rangle$ , où  $\langle | \rangle$  correspond au produit scalaire usuel [5]. La moyenne est prise sur un petit échantillon de molécules. Nous rappellerons juste que les termes diagonaux de la matrice densité donnent la densité de population dans chaque niveau d'énergie et les termes extra-diagonaux les couplages entre ces niveaux. À partir des fonctions propres de l'hamiltonien libre, nous pouvons également définir une matrice de vecteurs dans  $\mathcal{M}_N(\mathbb{C}^3)$  qui décrira la réponse du cristal à l'impulsion lumineuse. Cette *matrice dipolaire*  $\mu$  est définie par

$$(\mu_{rs})_{1 \leq r, s \leq N} = -e \langle \psi_r | \mathbf{r} \psi_s \rangle, \quad (4)$$

où  $-e$  représente la charge électronique et  $\mathbf{r}$  le vecteur position (ayant pour origine le noyau de l'atome). La matrice dipolaire  $\mu$  dépend de la structure quantique du milieu considéré. Nous verrons comment la déterminer dans la section 1.3.

L'hamiltonien  $H$  de l'électron est classiquement décomposé sous la forme  $H = H_0 + V$  où  $H_0$  est l'hamiltonien libre et  $V$  le potentiel résultant de l'interaction avec l'onde. À partir de l'équation de Schrödinger, on trouve l'équation d'évolution de la matrice densité [5, 6] :

$$\partial_t \rho_{rs} = -i\omega_{rs} \rho_{rs} + \frac{i}{\hbar} [V, \rho]_{rs}, \quad 1 \leq r, s \leq N, \quad (5)$$

où  $\omega_{rs} = \omega_r - \omega_s$  et pour deux opérateurs  $A$  et  $B$ ,  $[A, B] \equiv AB - BA$ .

L'électron réagit comme un dipôle quantique, le potentiel est donné par

$$V = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} \equiv -\mu_x E_x - \mu_y E_y - \mu_z E_z. \quad (6)$$

Le couplage entre le milieu et l'impulsion lumineuse se fait au travers du terme de polarisation intervenant dans les équations de Maxwell (2) et (3) donné par

$$\mathbf{P} = \mathcal{N} \text{tr}(\mu\rho) \equiv \mathcal{N} \begin{pmatrix} \text{tr}(\mu_x\rho) \\ \text{tr}(\mu_y\rho) \\ \text{tr}(\mu_z\rho) \end{pmatrix}, \quad (7)$$

où  $\mathcal{N}$  est le nombre de dipôles quantiques par unité de volume dans le cristal.

Nous obtenons alors le système final (8) des équations qu'il nous faut résoudre pour étudier la propagation lumineuse à l'aide du modèle de Maxwell-Bloch.

$$\left\{ \begin{array}{l} \mu_0 \partial_t H_x = -\partial_y E_z + \partial_z E_y, \\ \mu_0 \partial_t H_y = -\partial_z E_x, \\ \mu_0 \partial_t H_z = \partial_y E_x, \\ \partial_t D_x = \partial_y H_z - \partial_z H_y, \\ \partial_t D_y = \partial_z H_x, \\ \partial_t D_z = -\partial_y H_x, \\ \mathbf{D} = \varepsilon \mathbf{E} + \mathbf{P}, \\ \mathbf{P} = \mathcal{N} \text{tr}(\mu\rho), \\ \partial_t \rho_{rs} = -i\omega_{rs} \rho_{rs} - \frac{i}{\hbar} [\mu \cdot \mathbf{E}, \rho]_{rs}, \quad 1 \leq r, s \leq N. \end{array} \right. \quad (8)$$

### 1.3. Matrice dipolaire pour des cristaux non-linéaires

Comme on l'a vu précédemment, pour pouvoir utiliser le modèle de Maxwell-Bloch pour de la propagation dans des cristaux non-linéaires, il faut déterminer une matrice dipolaire  $\mu$  adaptée.

Nous présentons ici les grandes lignes de cette détermination, tous les détails étant donnés dans [1]. Pour cela, nous allons utiliser les grandeurs physiques pouvant être déterminées expérimentalement (ce qui n'est pas le cas de la matrice dipolaire). La matrice dipolaire sera déterminée à partir de mesure des susceptibilités linéaire et quadratique et de la composition du groupe d'isométries du cristal. Nous spécifions une matrice dipolaire pour un cristal de KDP mais la méthode développée peut être adaptée pour une large classe de cristaux.

Pour simplifier l'étude, nous allons considérer que chaque électron a trois niveaux d'énergie discrets éventuellement dégénérés. En effet, nous cherchons un modèle simple. Comme nous souhaitons étudier la génération de seconde harmonique, un modèle à au moins trois niveaux est nécessaire. Considérer plus de niveaux distincts rajouterait de la complexité. Le degré de dégénérescence de chaque niveau reste cependant à déterminer. Les énergies correspondant à chaque niveau peuvent être obtenues expérimentalement à l'aide du spectre d'absorption du cristal dans la gamme de fréquence qui nous intéresse par exemple.

Le processus peut être décomposé en trois étapes. Dans une première étape, il nous faut relier les susceptibilités linéaire et quadratique (grandeurs macroscopiques) à la matrice dipolaire (grandeur microscopique) que nous voulons déterminer. Ces relations sont classiques [5] et ont été écrites dans le cas de niveaux d'énergie dégénérés [1]. Ces relations sont obtenues en décomposant d'abord la matrice densité  $\rho$  en puissance du champ électrique  $\mathbf{E}$  à l'aide des équations de Bloch (5). On utilise ensuite l'expression de la polarisation en fonction de la matrice densité (7). On identifie les coefficients des différentes puissances de  $\mathbf{E}$  dans cette expression avec la décomposition de la polarisation en puissance du champ électrique dans laquelle les coefficients sont les susceptibilités optiques. La réponse linéaire du milieu au passage de l'impulsion à la fréquence  $\omega_p$  est alors donnée en fonction de la matrice dipolaire  $\mu$  par une expression du type

$$\chi_{k\ell}^{(1)}(\omega_p) = \frac{\mathcal{N}}{\hbar} \sum_{mn} (\rho_{mm}^e - \rho_{nn}^e) \frac{\mu_{mn}^k \mu_{nm}^\ell}{\omega_{nm} - \omega_p}, \quad k, \ell \in \{x, y, z\}, \quad (9)$$

où  $\rho^e$  est la matrice densité à l'équilibre thermodynamique, les niveaux sont comptés avec leurs multiplicités. Malheureusement, ces relations ne suffisent pas à déterminer entièrement la matrice dipolaire puisque expérimentalement on n'obtient des valeurs de  $\chi^{(1)}$  que pour certaines valeurs de  $\omega_p$ .

Dans une deuxième étape, pour éliminer quelques coefficients de  $\mu$ , on utilise alors un modèle de la susceptibilité linéaire développé dans [11]. Dans ce modèle à trois niveaux d'énergie, la susceptibilité linéaire est écrite à l'aide d'une formule de Sellmeier (*i.e.* sous une forme simplifiée de (9) ) dont les coefficients sont déterminés pour approcher au mieux les courbes expérimentales disponibles. Contrairement à (9), toutes les résonances  $\omega_{nm}$  n'interviennent pas dans [11], ce qui permet d'annuler des coefficients de  $\mu$  par identification. En comparant l'expression de la susceptibilité linéaire donnée par ce modèle et l'expression faisant intervenir la matrice dipolaire, nous obtenons ainsi des relations algébriques que les coefficients de la matrice dipolaire doivent satisfaire.

Nous utilisons ensuite le groupe d'isométrie du cristal noté  $G$ . L'hamiltonien libre de l'électron commute avec les éléments de ce groupe, donc les sous-espaces propres de  $H_0$  sont stables par le groupe de symétrie. Nous pouvons donc décomposer chaque sous-espace propre en somme directe de représentations irréductibles pour  $G$ . Chacune de ses représentations est le plus grand sous-espace stable non trivial sous l'action de  $G$ .

Les coefficients de la matrice dipolaire  $\mu$  sont calculés à l'aide de deux fonctions propres (4). Nous déterminons la nullité ou non de ces coefficients suivant l'appartenance des fonctions propres  $\psi_r$  et  $\psi_s$  à l'une des représentations irréductibles de  $G$ .

Munis de cette information, nous construisons les trois sous-espaces propres à l'aide de représentations irréductibles pour que les conditions algébriques obtenues à la deuxième étape soient vérifiées tout en ayant le moins possible de dégénérescence. Nous postulons ainsi le modèle le plus simple pour la structure quantique du cristal (*i.e.* le degré de dégénérescence et la composition de chacun des trois niveaux d'énergie).

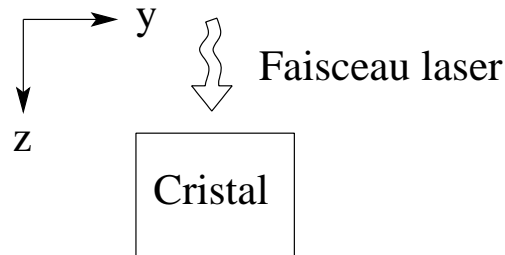
Ce modèle dont seul le niveau fondamental est dégénéré (3 fois) a 5 niveaux d'énergie au total. La matrice dipolaire correspondante est donc dans  $\mathcal{M}_5(\mathbb{C}^3)$ . Ce modèle nous fournit la grande majorité des coefficients de la matrice dipolaire.

Il reste encore à ce stade deux coefficients à déterminer. Pour cela, nous choisissons ces coefficients pour approcher au mieux les courbes expérimentales disponibles pour la susceptibilité quadratique du cristal à l'aide d'une expression similaire à (9) pour la susceptibilité quadratique.

## 2. SCHÉMA NUMÉRIQUE

Les grandeurs physiques ( $\mathbf{E}$ ,  $\mathbf{D}$ ,  $\mathbf{H}$ ,  $\mathbf{P}$ ,  $\rho$ ) dépendent de trois variables : le temps  $t$  et les coordonnées  $y$  (dans la direction transverse) et  $z$  (dans la direction de propagation de l'onde). Le dispositif expérimental est représenté sur la figure 1.

FIGURE 1. Configuration du domaine.



On prendra des conditions aux limites périodiques dans la direction transverse et de Silver-Müller dans la direction de propagation.

Pour une fonction  $u$  définie sur la grille, nous allons noter  $u_{j,k}^n$  (ou  $u|_{j,k}^n$ ) la valeur de  $u$  au point  $(t_n, y_j, z_k)$  de la grille, où  $t_n = n\delta t$ ,  $y_j = j\delta y$ ,  $z_k = k\delta z$ ,  $\delta t$  est le pas de temps,  $\delta y$  le pas d'espace dans la direction  $y$  et  $\delta z$  le pas dans la direction  $z$ .

On notera également  $\mathbb{D}^t$ ,  $\mathbb{D}^y$ ,  $\mathbb{D}^z$ , les opérateurs aux différences finies centrées dans les directions  $t$ ,  $y$ ,  $z$ .

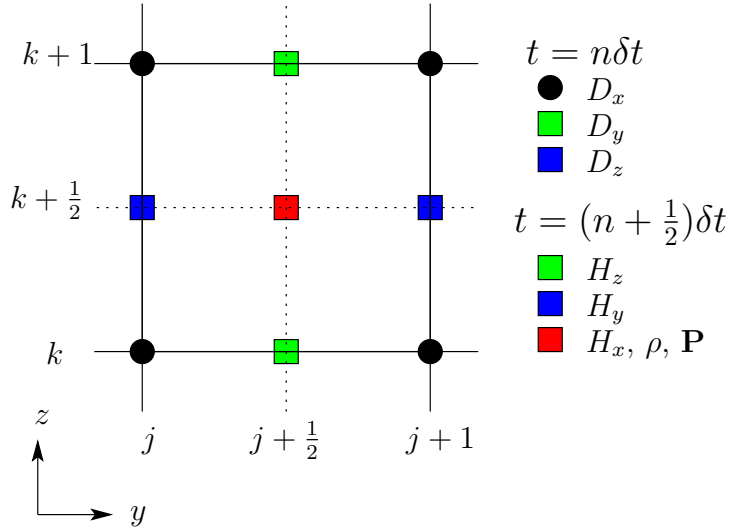
Par exemple, en utilisant cette notation

$$(\mathbb{D}^y E_x)_{j+\frac{1}{2},k}^{n+\frac{1}{2}} = \frac{E_x|_{j+1,k}^{n+\frac{1}{2}} - E_x|_{j,k}^{n+\frac{1}{2}}}{\delta y}.$$

## 2.1. Équations de Maxwell

Les équations de Maxwell sont discrétisées par une méthode de différences finies en adaptant le schéma de Yee [10]. Nous avons représenté le schéma correspondant sur la Figure 2.

FIGURE 2. Schéma de discrétisation des équations de Maxwell-Bloch.



Avec l'aide de ce schéma, nous obtenons les équations suivantes à partir de (3)

$$\begin{aligned} \mu_0(\mathbb{D}^t H_x)_{j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n &= -(\mathbb{D}^y E_z)_{j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n + (\mathbb{D}^z E_y)_{j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n, \\ \mu_0(\mathbb{D}^t H_y)_{j,k+\frac{1}{2}}^n &= -(\mathbb{D}^z E_x)_{j,k+\frac{1}{2}}^n, \\ \mu_0(\mathbb{D}^t H_z)_{j+\frac{1}{2},k}^n &= (\mathbb{D}^y E_x)_{j+\frac{1}{2},k}^n, \end{aligned} \tag{10}$$

qui permettent de calculer le champ magnétique  $\mathbf{H}$  à chaque pas de temps pourvu que le champ électrique  $\mathbf{E}$  soit connu. Nous verrons dans la section 2.2 comment déterminer le champ électrique à partir de l'induction et de la polarisation.

En utilisant le même schéma, nous obtenons les équations sur l'induction électrique  $\mathbf{D}$ :

$$\begin{aligned} (\mathbb{D}^t D_x)_{j,k}^{n+\frac{1}{2}} &= \left[ (\mathbb{D}^y H_z)_{j,k}^{n+\frac{1}{2}} - (\mathbb{D}^z H_y)_{j,k}^{n+\frac{1}{2}} \right] - (\mathbb{D}^y H_x)_{j,k}^{n+\frac{1}{2}} \\ (\mathbb{D}^t D_y)_{j+\frac{1}{2},k}^{n+\frac{1}{2}} &= (\mathbb{D}^z H_x)_{j+\frac{1}{2},k}^{n+\frac{1}{2}}, \\ (\mathbb{D}^t D_z)_{j,k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} &= -(\mathbb{D}^y H_x)_{j,k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}}. \end{aligned} \quad (11)$$

Si le champ magnétique  $\mathbf{H}^{n+\frac{1}{2}}$  est connu, on peut donc ainsi entièrement déterminer l'induction  $\mathbf{D}^{n+1}$ .

## 2.2. Traitement de la polarisation et calcul du champ électrique

Pour résoudre les équations de Faraday (10) au temps  $t_{n+\frac{3}{2}}$ , il nous faut encore calculer  $\mathbf{E}^{n+1}$ . Nous allons procéder en quatre étapes. Si l'on suppose que  $\mathbf{H}^{n+\frac{1}{2}}$  est connu, les équations d'Ampère (11) au temps  $t_{n+\frac{1}{2}}$  nous fournissent  $\mathbf{D}^{n+1}$ .

Le champ électrique est donné par

$$\mathbf{E}^{n+1} = \eta(\mathbf{D}^{n+1} - \mathbf{P}^{n+1}), \quad (12)$$

donc il nous faut aussi obtenir la polarisation  $\mathbf{P}$  au temps  $t_{n+1}$ . Si la polarisation  $\mathbf{P}^n$  est connue, on peut utiliser l'équation

$$(\mathbb{D}^t P_d)^{n+\frac{1}{2}} = \frac{P_d^{n+1} - P_d^n}{\delta t} = -i\mathcal{N}\text{tr}(\mu(\omega_{rs})_{r,s} \rho^{n+\frac{1}{2}}) - \frac{i\mathcal{N}}{\hbar} \text{tr}(\mu_d[V^{n+\frac{1}{2}}, \rho^{n+\frac{1}{2}}]), \quad d \in \{x, y, z\},$$

pour obtenir  $\mathbf{P}^{n+1}$ .

Il nous reste alors à calculer  $V^{n+\frac{1}{2}}$ . D'abord, nous calculons

$$\mathbf{P}^{n+\frac{1}{2}} = \mathcal{N}\text{tr}(\mu \rho^{n+\frac{1}{2}}),$$

puis  $\mathbf{E}^{n+\frac{1}{2}}$  à partir de

$$\mathbf{E}^{n+\frac{1}{2}} = \eta \left( \frac{\mathbf{D}^{n+1} + \mathbf{D}^n}{2} - \mathbf{P}^{n+\frac{1}{2}} \right), \quad (13)$$

On obtient alors  $\mathbf{E}^{n+1}$  à partir de (12). Il nous reste à calculer la matrice densité  $\rho^{n+\frac{1}{2}}$  pour fermer le système.

## 2.3. Équations de Bloch

La discrétisation des équations de Bloch est décrite dans [7], nous la rappelons ici. Les équations de Bloch donnent

$$\partial_t \rho_{rs} = -i\omega_{rs} \rho_{rs} - \frac{i}{\hbar} [V, \rho]_{rs}, \quad 1 \leq r, s \leq N,$$

où  $V = -E_x \mu_x - E_y \mu_y - E_z \mu_z$ .

À chaque pas de temps, et en chaque point  $(j, k)$ , nous calculons le potentiel  $V$  par

$$V_{j,k}^n = -E_x |_{j,k}^n \mu_x - \frac{E_y |_{j+\frac{1}{2},k}^n + E_y |_{j-\frac{1}{2},k}^n}{2} \mu_y - \frac{E_z |_{j,k+\frac{1}{2}}^n + E_z |_{j,k-\frac{1}{2}}^n}{2} \mu_z. \quad (14)$$

Nous pouvons alors réécrire les équations de Bloch sous la forme

$$\partial_t \rho_{rs} = -\frac{i}{\hbar} [H_0 + V, \rho]_{rs}, \quad (15)$$



où  $H_0 = \text{diag}(\hbar\omega_i)_{1 \leq i \leq N}$  est la matrice décrivant l'hamiltonien libre.

La solution analytique de cette équation est connue

$$\rho(t) = \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \int_0^t (H_0 + V(s)) ds\right) \rho(0) \exp\left(\frac{i}{\hbar} \int_0^t (H_0 + V(s)) ds\right). \quad (16)$$

Il nous reste à approcher les intégrales intervenant dans (16) par

$$\int_0^t (H_0 + V(s)) ds \sim t \left(H_0 + V\left(\frac{t}{2}\right)\right). \quad (17)$$

Nous allons également calculer l'exponentielle des matrices intervenant dans (16) par la formule

$$\exp M \sim \left(I - \frac{1}{2}M\right)^{-1} \left(I + \frac{1}{2}M\right). \quad (18)$$

Nous pouvons alors discrétiser l'équation (5) en temps par

$$\rho^{n+\frac{1}{2}} = \left(I + \frac{i\delta t}{2\hbar} (H_0 + V^n)\right)^{-1} \left(I - \frac{i\delta t}{2\hbar} (H_0 + V^n)\right) \rho^{n-\frac{1}{2}} \left(I - \frac{i\delta t}{2\hbar} (H_0 + V^n)\right)^{-1} \left(I + \frac{i\delta t}{2\hbar} (H_0 + V^n)\right), \quad (19)$$

ceci en chaque point du domaine spatial (il n'y a pas de dérivées spatiales dans les équations de Bloch).

### 3. EXPÉRIENCES NUMÉRIQUES

#### 3.1. Auto-focalisation

Dans cette section, nous allons montrer que le modèle de Maxwell-Bloch peut rendre compte d'effets cubiques. Pour cela, nous présentons une expérience d'auto-focalisation. En effet, l'indice optique d'un matériau dépend de l'intensité lumineuse incidente. Cette dépendance n'est sensible que pour des faisceaux très intenses.

Dans cette expérience, nous allons considérer un faisceau gaussien durant 7.5 fs (soit un peu plus de deux périodes) et de  $12 \mu\text{m}$  de largeur transverse et de longueur d'onde  $1.06 \mu\text{m}$ . Le faisceau a une intensité de  $1.5 \times 10^{10} \text{ V/m}$ . Le cristal de  $100 \mu\text{m}$  d'épaisseur est précédé de  $12 \mu\text{m}$  de milieu linéaire (à l'indice du cristal pour minimiser les réflexions à l'interface). Le faisceau laser attaque le cristal à l'incidence normale.

Nous prenons 100 points par longueur d'onde dans la direction de propagation de l'impulsion lumineuse et 120 points dans la direction transverse.

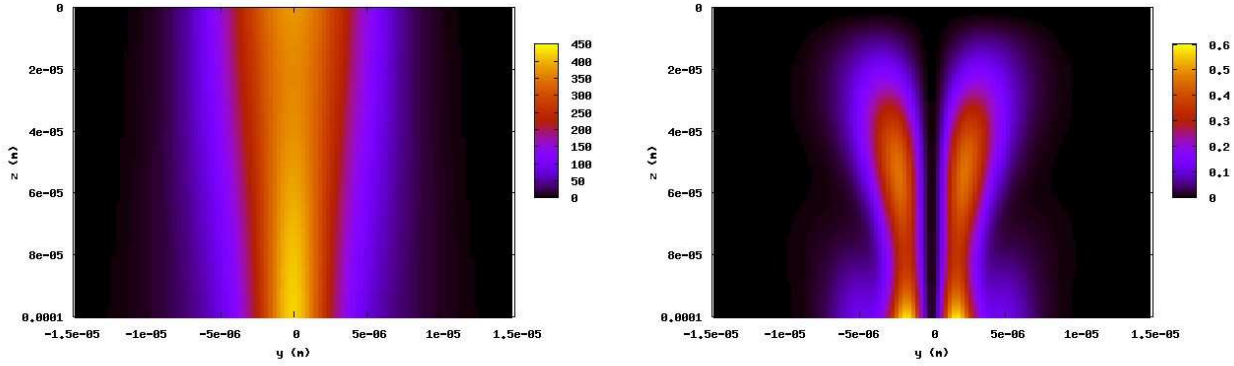
On a représenté les flux d'énergie à la fin de l'expérience sur la figure 3. Le flux  $F_y$  contient l'harmonique fondamentale et les harmoniques impaires. Le flux  $F_x$  contient la deuxième harmonique et les harmoniques paires.

Sur la figure représentant  $F_y$ , on observe bien que le faisceau se focalise de plus en plus au fur et à mesure de la propagation dans le cristal. Sur le flux  $F_x$ , on observe un peu de génération de seconde harmonique (initialement il n'y a pas d'énergie dans cette polarisation). Mais comme la condition d'accord de phase n'est pas vérifiée, la croissance est limitée.

#### 3.2. Modélisation de défauts

Le modèle de Maxwell-Bloch est un modèle microscopique. On peut donc lui apporter des perturbations microscopiques comme des défauts (par exemple survenus lors de la croissance du cristal) et étudier leur influence sur la propagation lumineuse.

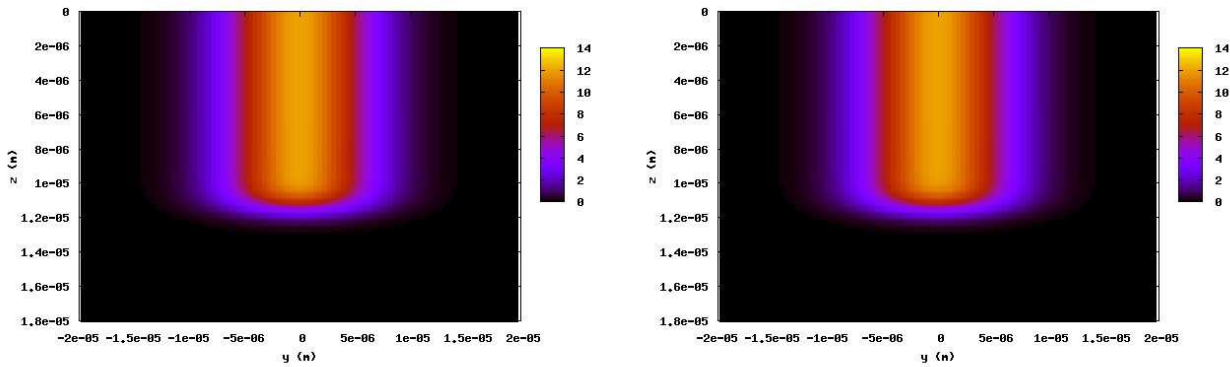
Nous considérons un faisceau laser gaussien de 10 fs (soit environ 2.8 périodes), de  $15 \mu\text{m}$  dans la direction transverse. Son intensité est de  $10^9 \text{ V/m}$  et sa longueur d'onde de  $1.06 \mu\text{m}$ . L'impulsion laser touche le cristal à

FIGURE 3. Flux d'énergie dans les polarisations  $y$  et  $x$ . L'unité d'énergie est arbitraire.

l'angle d'accord de phase (voir [5] par exemple). Le cristal traversé a une épaisseur de  $30 \mu\text{m}$ . Nous considérons toujours une grille de 100 points par longueur d'onde dans la direction longitudinale et 100 points dans la direction transverse ( $\delta z = 0.0106 \mu\text{m}$ ,  $\delta y = 0.42 \mu\text{m}$ ). Le pas de temps est donné par une condition CFL à partir des pas d'espace ( $\delta t = 0.02 \text{ fs}$ ).

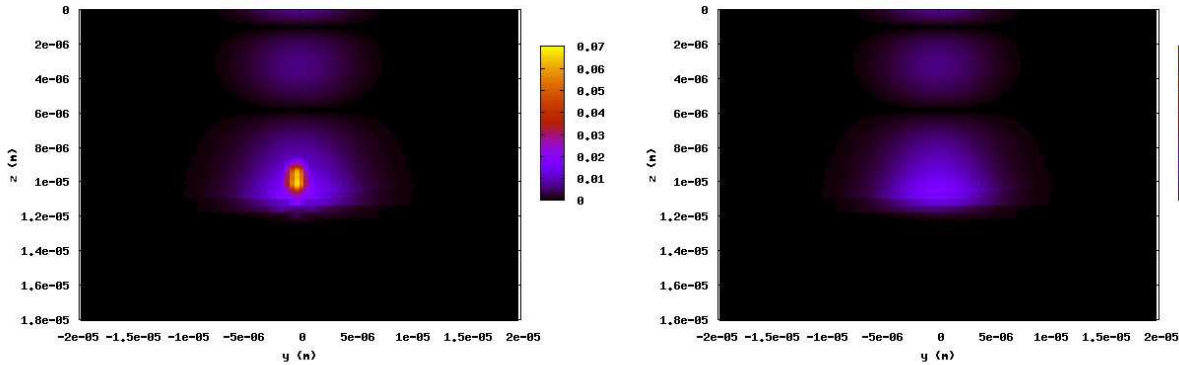
Au centre du cristal, un défaut est modélisé par un cercle de  $1 \mu\text{m}$  de rayon. Dans ce défaut, on a fait tourner les axes optiques du cristal de 10% (et donc le tenseur  $\varepsilon$  et la matrice dipolaire  $\mu$ ) par rapport à l'angle d'accord de phase.

Sur la figure 4, nous avons représenté le flux d'énergie dans la polarisation  $y$  avec et sans le défaut cristallin.

FIGURE 4. Flux d'énergie dans la polarisation  $y$  à la fin de l'expérience (après 74 fs) avec et sans défaut cristallin. L'unité d'énergie est arbitraire.

On peut voir que l'harmonique fondamentale se propage sans perturbation visible du fait du défaut cristallin. Sur la figure 5, nous avons représenté le flux d'énergie dans la polarisation  $x$  avec et sans le défaut cristallin.

FIGURE 5. Flux d'énergie dans la polarisation  $x$  avec et sans le défaut après 74 fs. L'unité d'énergie est arbitraire.



Sur la première image de la figure 5, on peut observer que l'énergie se concentre sur le défaut. La présence d'un défaut cristallin influence donc la génération d'harmoniques et cette concentration d'énergie peut endommager le cristal si on utilise des lasers de forte intensité.

## CONCLUSION

Dans cet article, nous avons décrit un modèle microscopique adapté pour décrire la propagation d'une impulsion ultra-courte dans un cristal non-linéaire. Contrairement aux modèles macroscopiques classiques, ce modèle tient compte de la dispersion des non-linéarités et ne se limite pas à la seule non-linéarité quadratique. Il rend compte de nombreux phénomènes physiques (Raman, ...), ce qui peut rendre difficile l'étude d'un phénomène particulier. De plus, l'étude mathématique et numérique de la non-linéarité n'est pas aisée [4]. Il est cependant beaucoup plus coûteux numériquement ce qui limite son utilisation aux faibles épaisseurs cristallines. Cependant, il peut servir à valider des modèles macroscopiques dont le coût numérique serait plus acceptable.

## REFERENCES

- [1] C. Besse, B. Bidégaray, A. Bourgeade, P. Degond, and O. Saut. A Maxwell-Bloch model with discrete symmetries for wave propagation in nonlinear crystals: an application to KDP. *M2AN Math. Model. Numer. Anal.*, 38(2):321–344, 2004.
- [2] A. Bourgeade and E. Freysz. Computational modeling of second-harmonic generation by solution of full-wave vector Maxwell equations. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(2):226–234, 2000.
- [3] A. Bourgeade and O. Saut. Comparison between the Maxwell-Bloch and two nonlinear Maxwell models for ultrashort pulses propagation in nonlinear crystals. submitted, 2004.
- [4] A. Bourgeade and O. Saut. Numerical methods for the bidimensional Maxwell-Bloch equations in nonlinear crystals. *Journal of Computational Physics*, 213(2):823–843, 2006.
- [5] Robert W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, 1992.
- [6] Alan C. Newell and Jerome V. Moloney. *Nonlinear optics*. Advanced Topics in the Interdisciplinary Mathematical Sciences. Addison-Wesley Publishing Company Advanced Book Program, Redwood City, CA, 1992.
- [7] Olivier Saut. Computational modeling of ultrashort powerful laser pulses in an anisotropic crystal. *J. Comput. Phys.*, 197(2):624–646, 2004.
- [8] J.P. SERRE. *Représentations linéaires des groupes finis*. Hermann, 1998.
- [9] A. Taflové and S. Hagness. *Computational electrodynamics: the finite-difference time-domain method*. Artech House Inc., Boston, MA, second edition, 2000.
- [10] K. S. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media. *IEEE Trans. Antennas Propag.*, AP-14:302–307, 1966.

- [11] Frits ZERNICKE. Refractive indices of ADP and KDP between 2000 Å and 1.5 μm. *J. Opt. Soc. Am.*, 54(10):1215–1220, 1964.