

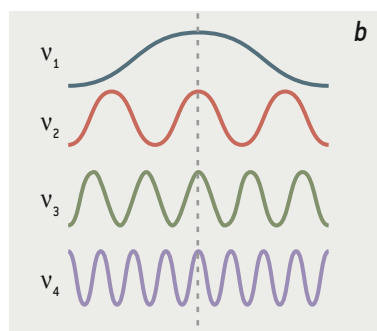
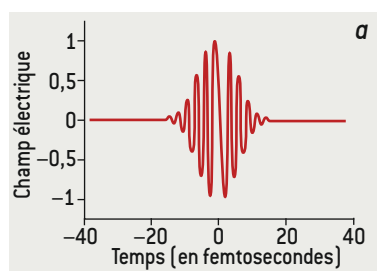
L'AUTEUR



Béatrice CHATEL est chercheuse du CNRS au Laboratoire Collisions, agrégats, réactivité, CNRS/Université Toulouse 3.

Impulsion ultrabrève

✓ Une impulsion ultrabrève ou femtoseconde *[a]* est obtenue par la somme d'ondes monochromatiques qui ont une relation de phase *[b]*. On la caractérise dans le domaine des fréquences par son spectre. Par exemple, une impulsion laser de longueur d'onde centrée sur 800 nanomètres (dans le rouge) et de largeur spectrale 100 nanomètres, telle celle représentée *[a]*, a une durée égale à 10 femtosecondes.



de l'impulsion, afin qu'elles arrivent en même temps que les composantes de hautes fréquences à l'endroit où l'on souhaite cibler l'impulsion pour réaliser une expérience. Cette méthode, utilisée pour tout laser femtoseconde, constitue le fondement du façonnage.

Les effets de propagation d'une impulsion ultracourte peuvent être plus complexes et nécessiter un ajustement différent des chemins associés à chaque fréquence. Dans ce cas, on utilise un façonneur programmable (voir l'encadré page ci-contre). La technique la plus répandue repose sur un montage optique nommé ligne à dispersion nulle.

Dans ce montage, les composantes de l'impulsion sont spatialement séparées dans un plan, puis focalisées par une lentille sur les cellules indépendantes d'un dispositif à cristaux liquides programmable. Chaque cellule ou pixel de cristaux liquides joue le rôle d'un morceau de verre d'épaisseur ajustable en fonction de la tension électrique appliquée à ses bornes. Ainsi, chaque composante fréquentielle qui traverse un pixel suit un chemin optique plus ou moins allongé, selon un programme défini. On peut alors façonner à volonté la composition temporelle et fréquentielle de l'impulsion.

En choisissant les éléments optiques du montage, l'expérimentateur synthétise différentes sortes d'impulsions (train d'impulsions, impulsions de forme temporelle carrée, impulsions étirées, etc.). Ainsi, les physiciens façonnent des impulsions laser comme des compositeurs écrivent une partition en sélectionnant les différentes notes de la gamme (*do, ré, mi, fa, sol*, etc., qui équivalent aux fréquences) et en leur donnant une durée choisie (blanche, noire, croche, silence, etc.). Par exemple, ils peuvent créer une impulsion débutant par du rouge, puis du orange, puis, après un silence, une seconde impulsion comportant la partie bleue du spectre.

À l'origine, le façonnage des impulsions ultracourtes avait pour objectif de compenser les déformations lors de la propagation. Les façonneurs programmables ont été mis au point ensuite pour engendrer de nouveaux effets lors de l'interaction avec la matière, comme nous le verrons plus loin.

En une décennie, les lasers femtosecondes se sont développés dans les laboratoires du monde entier. Ils ont trouvé des applications dans l'industrie, en médecine

ou en recherche fondamentale. Les chercheurs les utilisent pour observer en direct des réactions chimiques, l'évolution ultrarapide de matériaux soumis à la lumière ou le transfert d'énergie dans des molécules (voir la figure 1).

Ahmed Zewail, pionnier du domaine à l'Institut de technologie de Californie, a ainsi reçu le prix Nobel de chimie en 1999 pour ses études sur les états de transition des réactions chimiques par spectroscopie femtoseconde.

Il a développé la technique dite pompe-sonde, sorte de chronophotographie à la façon d'Edgerton où la résolution est donnée par la durée de l'impulsion laser. Une première impulsion laser, la « pompe », est envoyée sur un ensemble de molécules pour amorcer la réaction chimique. Une seconde impulsion, la « sonde », permet de sonder l'état des molécules à différents instants après le déclenchement du processus.

La caméra des chimistes

On retarde la sonde par rapport à la pompe en faisant varier la longueur du chemin optique de la sonde. Comme la vitesse de la lumière vaut environ 300 000 kilomètres par seconde, si la sonde parcourt 30 micromètres de plus, elle arrivera 100 femtosecondes plus tard. Si elle parcourt trois mètres de plus, elle arrivera dix nanosecondes plus tard, etc. En répétant ainsi l'expérience pour différents délais entre les impulsions pompe et sonde, on reconstruit pas à pas, comme un film, l'évolution en temps réel de la réaction chimique.

Par cette méthode, l'équipe d'A. Zewail a étudié la photo-isomérisation (conversion photochimique) du stilbène. Cette molécule est constituée de deux anneaux de benzène reliés sous une forme dite *cis* ou une forme dite *trans*. Les chimistes ont montré que les deux anneaux tournent de façon synchrone en passant d'une forme à l'autre.

D'autres travaux ont montré des mouvements similaires au sein de la molécule de rétinol qui se situe à la base des cellules en bâtonnets de la rétine. La première étape de la perception de la lumière par l'œil est une conversion photochimique *cis-trans* du rétinol. Avec la technique pompe-sonde, les chimistes ont montré que cette réaction dure environ 200 femtosecondes, ce qui est bien plus

court que les processus de relaxation à l'échelle moléculaire qui transforment l'énergie lumineuse en chaleur. Cela a permis de comprendre pourquoi l'œil est aussi efficace et assure une bonne vision nocturne. De telles études ont aussi expliqué l'efficacité de la conversion d'énergie lumineuse de la chlorophylle lors de la photosynthèse.

La femtochimie s'intéresse à la dynamique des réactions chimiques sur des échelles de temps ultracourtes. En parallèle, un domaine complémentaire a émergé : celui du contrôle. En effet, les chercheurs se sont aperçus que l'on peut également contrôler le déroulement de

réactions chimiques en modifiant les paramètres du laser (amplitude, phase et polarisation).

Quand le façonnage rejoint la théorie quantique

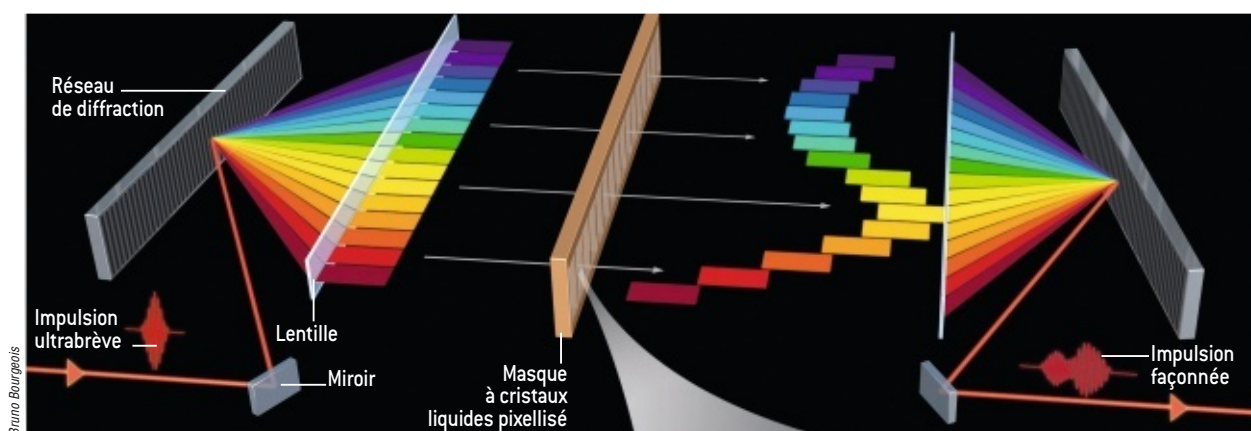
Un tel contrôle, dit cohérent, est fondé sur le concept des interférences quantiques et sur la connaissance théorique des systèmes moléculaires. Ainsi, une réaction chimique peut suivre différents « chemins », plus ou moins coûteux en énergie : des chemins directs ou des chemins indirects, dits

séquentiels. Ces chemins sont engendrés par l'interaction des différentes composantes spectrales avec la matière. Ils ont une relation de phase entre eux qui dépend de la relation de phase entre les composantes spectrales de l'impulsion.

Le façonnage de l'impulsion permet de créer des interférences constructives entre ces chemins et de maximiser par exemple le produit de la réaction chimique. Pour améliorer la compréhension de l'interaction des impulsions façonnées, de nombreux travaux ont été menés sur des systèmes modèles.

Notre équipe à Toulouse s'est ainsi intéressée à l'atome de sodium. Cet atome

LE FAÇONNAGE D'IMPULSIONS ULTRACOURTES

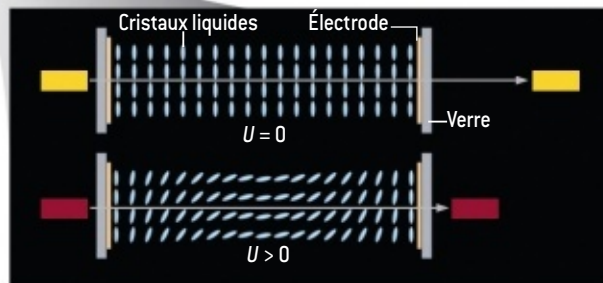


Une impulsion lumineuse ultracourte est décrite par une fonction du temps et par un vecteur déterminant la direction du champ électromagnétique. Cette impulsion est tellement courte qu'on ne sait pas la façonner dans le temps. On la façonne alors dans l'espace des fréquences relié au domaine temporel par la transformée de Fourier. Dans l'espace des fréquences, une impulsion est définie par une phase, une amplitude et une polarisation. Le façonnage de la phase est réalisé grâce à un masque placé dans un dispositif nommé ligne à dispersion nulle (*ci-dessus*).

L'impulsion initiale est d'abord envoyée sur un premier réseau de diffraction où les fréquences constitutives sont séparées. Elles sont ensuite focalisées dans un plan où l'on dispose un masque. Un montage symétrique permet de recompo-

ser toutes les composantes spectrales en sortie. Le masque comprend, entre deux couches de verre, une couche d'éléments à cristaux liquides. Ceux-ci sont répartis en pixels, sortes de cellules individuelles, mis sous tension par des électrodes reliées à un programmeur.

Les cristaux liquides disposés dans le masque sont de type nématique. Leurs molécules ont une forme de bâtonnets, orientés parallèlement aux couches de verre en l'absence de tension. Lorsqu'on applique un potentiel U entre deux électrodes d'un pixel, les molécules pivotent suivant la direction du champ électrique. Cela modifie l'interaction des molécules avec la lumière, ce qui a pour conséquence d'augmenter l'indice de réfraction du milieu, ou, de façon équivalente, d'allonger le chemin optique de l'onde qui le traverse (*voir le zoom*).



En contrôlant ainsi le chemin optique suivi par chaque composante fréquentielle, on réalise un façonnage de la phase de l'impulsion. Il existe deux autres types de façonnage, en amplitude ou en polarisation, qui utilisent des éléments supplémentaires dans ce montage. Pour façonner une onde en amplitude, on ajoute pour atténuer chaque onde un masque de densité, ou bien on utilise les mêmes cristaux liquides avec des polariseurs disposés de part et d'autre du masque. Pour façon-

ner une impulsion en polarisation, on modifie la direction du champ électromagnétique en orientant les cristaux liquides suivant l'axe souhaité.

Le type de façonnage est choisi en fonction des paramètres que l'on désire contrôler dans une expérience. Certains laboratoires sont équipés de doubles façonneurs, pour lesquels phase et amplitude, ou phase et polarisation, sont façonnées en même temps. Il existe également des triples façonneurs (de phase, amplitude et polarisation).