

✓ SUR LE WEB

Réseau FEMTO :
<http://reseau-femto.cnrs.fr/spip.php?rubrique39>

✓ BIBLIOGRAPHIE

A. Monmayrant *et al.*,
A newcomer's guide to ultrashort
pulse shaping
and characterization, *J. Phys. B*,
vol. 43, 103001, 2010.

S. Haessler *et al.*, Attosecond
imaging of molecular electronic
wavepackets, *Nature Physics*,
vol. 6, pp. 200-206, 2010.

G. Labroille *et al.*, Dispersion-based
pulse shaping for multiplexed
two-photon fluorescence
microscopy, *Optics Letters*,
vol. 35, pp. 3444-3446, 2010.

B. Chatel *et al.*, Competition
between sequential and direct
paths in a two-photon transition,
Physical Review A 68, 041402,
2003.

à la propriété d'émettre des raies de fluorescence intenses. Présent dans la mésosphère (couche de l'atmosphère comprise entre 50 et 80 kilomètres d'altitude), le sodium est d'ailleurs utilisé comme étoile artificielle afin de corriger les distorsions des turbulences atmosphériques sur les images des télescopes. Le principe est d'envoyer une impulsion laser dans le ciel pour exciter un ensemble d'atomes de sodium. Ils émettent alors de la lumière à un endroit de l'espace, créant une étoile artificielle.

Pour améliorer le degré de correction, nous excitons les atomes de sodium par un mécanisme où ils absorbent deux photons. Nous avons étudié en quoi le contrôle cohérent permettrait de maximiser cette excitation à deux photons afin de rendre l'étoile plus brillante. C'est là qu'intervient le contrôle par façonnage de l'impulsion. En effet, pour exciter une transition à deux photons vers un état donné, l'atome peut absorber un premier photon jaune de façon à rejoindre un état quantique intermédiaire, et arriver à l'état final souhaité en absorbant un second photon vert.

Ce chemin est le chemin séquentiel, par opposition au chemin direct, suivant lequel l'atome absorbe d'un coup une paire de photons (telle que la somme de leurs énergies soit égale à l'énergie des deux photons, jaune et vert). Si toutes les fréquences présentes dans l'impulsion laser arrivent en même temps, toutes les paires appropriées de photons contribuent au chemin direct. Si, en revanche, on façonne l'impulsion de telle sorte qu'un photon jaune arrive en premier, et un photon vert en second, on favorise le chemin séquentiel. En choisissant finement le façonnage des impulsions, les physiciens font interférer les chemins quantiques direct et séquentiel. Quand l'interférence est constructive, l'excitation des atomes est à son maximum d'efficacité.

Sonder la matière

En 1992, le théoricien Herschel Rabitz, de l'Université de Princeton, aux États-Unis, a introduit le concept d'optimisation du façonnage. Selon lui, il n'est plus nécessaire de savoir modéliser le système moléculaire et l'interaction pour guider la réaction dans le sens souhaité. Lors d'une interaction entre les molécules et l'impulsion laser, il suffit de définir le signal à optimiser (les produits de la réaction chimique par exemple) et de se donner le moyen de le mesurer. Pour ce faire, on utilise un algorithme d'évolution, en appliquant une boucle rétroactive entre ce signal et le façonnage de l'impulsion.

L'équipe de Gustav Gerber, à l'Université de Würzburg, en Allemagne, a apporté la première démonstration expérimentale de ce concept en 1998. Elle a montré que lors de la photodissociation d'un complexe fer-carbonyl, engendrée par une impulsion laser façonnée, il est possible de modifier le rapport des concentrations des deux produits de la dissociation (de 2:1 à 5:1). Le façonnage de l'impulsion, réalisé en quelque sorte par tâtonnements automatiques, optimise le signal de façon à guider le système vers l'état désiré.

Outre la femtochimie, les impulsions laser ultrabrèves sont utilisées dans des techniques qui exploitent leur concentration d'énergie. En effet, un laser à impulsions ultracourtes atteint des puissances instantanées (rapport de l'énergie par impulsion sur la durée de l'impulsion) de l'ordre du gigawatt et une densité de puissance (rapport de la puis-

RÉPONSE NON LINÉAIRE D'UN MILIEU

Lorsqu'on éclaire un objet, les phénomènes de transmission, de diffusion, ou d'absorption et de réémission de la lumière traduisent la réponse linéaire du milieu éclairé.

Regardez-vous dans la glace dans une pièce sombre, vous devinez seulement votre visage. En allumant la lumière, vous multipliez l'intensité lumineuse par 50, et votre visage apparaît 50 fois plus lumineux. La réflexion de la lumière est une réponse linéaire, car le signal détecté est proportionnel au signal d'entrée.

À fort éclairage, la réponse du milieu peut devenir non linéaire. Les lasers femtosecondes, avec lesquels on peut concentrer de fortes énergies en un temps bref, peuvent engendrer une réponse non linéaire des matériaux. Lorsqu'on dirige un faisceau lumineux sur un système moléculaire, les électrons des atomes de la matière oscillent et passent d'un niveau d'énergie initial (ϵ_0) à un niveau d'énergie supérieur (ϵ_1 ou ϵ_2). Ceux-ci réémettent de l'énergie sous forme d'un photon en revenant à leur niveau d'énergie initial. Si le champ est très intense, l'oscillation des électrons est déformée et la lumière émise n'aura pas la même fréquence que la lumière incidente. En termes corpusculaires, cela se traduit par le fait que le matériau absorbe par

exemple deux photons rouges et émet un photon bleu (de fréquence égale à deux fois celle d'un photon rouge). Tel est le principe de l'absorption à deux photons utilisée dans la microscopie à deux photons. Avec une lumière aussi intense, il est également possible d'engendrer des phénomènes non linéaires d'ordre plus élevé, avec des harmoniques supérieures (absorption de n photons).

