

✓ 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-

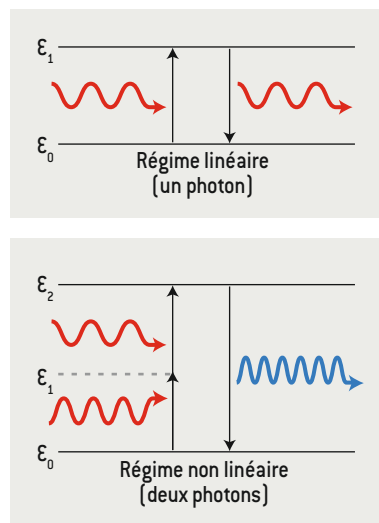
RÉPONSE NON LINÉAIRE D'UN MILIEU

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).



sance instantanée sur la section du faisceau) de l'ordre du térawatt (10^{12} watts) par centimètre carré.

En imagerie biologique avec des intensités plus faibles, cette concentration d'énergie peut servir à reconstruire une image en volume d'un tissu épais (constitué de plusieurs couches de cellules, tels les os ou les muscles) et à en distinguer les différents constituants.

La technique de microscopie multiphotonique, développée dans les années 1980, utilise des lasers femtosecondes. Elle est fondée sur le phénomène d'absorption à deux photons, qui repose sur la réponse non linéaire des tissus biologiques (voir l'encadré page ci-contre). Les impulsions laser sont focalisées dans un petit volume. La résolution en profondeur est obtenue en apportant une énergie importante, qui entraîne une réponse non linéaire (émission d'une lumière de fréquence différente) du volume de tissu observé. Il ne reste plus alors qu'à balayer ce point focal pour reconstruire l'image de l'objet.

Depuis peu, les biologistes combinent le façonnage d'impulsions à la technique de microscopie multiphotonique. En effet, le façonnage maximise la réponse non linéaire d'un type de molécule plutôt qu'un autre, ce qui accroît la sélectivité et la spécificité des signaux observés, et rend les images plus riches en informations. Ainsi, Manuel Joffre et Emmanuel Beaurepaire, du Laboratoire Optique et biosciences à Palaiseau, ont visualisé simultanément deux protéines différentes dans un embryon de mouche, à l'aide d'impulsions laser façonnées (voir la figure 2). En superposant les deux images obtenues, ils ont reconstruit une image unique contenant les deux marquages différenciés.

Naissance de l'atmosphère

Si la microscopie multiphotonique s'appuie sur des effets non linéaires d'ordre 2 ou 3, les lasers femtosecondes ont aussi permis d'atteindre le régime des harmoniques élevées, d'ordre n . Suivant l'approche corpusculaire de la lumière, un milieu absorbant n photons à la fréquence ν émet de la lumière à la fréquence $n\nu$.

Ainsi, en 1988, Anne l'Huillier et ses collègues, au CEA de Saclay, ont excité des atomes de gaz inertes tels que le néon et l'argon à l'aide d'impulsions femtosecon-

des. Ils ont observé l'émission de lumière à des fréquences dites harmoniques, multiples de la fréquence laser initiale.

L'utilisation du façonnage a participé au contrôle de l'émission des harmoniques. Aujourd'hui, les chercheurs sont capables d'engendrer un grand nombre d'harmoniques en même temps, ce qui crée une impulsion laser avec un spectre extrêmement large. Cela a permis d'envisager l'obtention d'impulsions attosecondes.

Une décennie de travaux a été nécessaire pour contrôler ces processus et mettre au point des dispositifs permettant de mesurer la durée d'impulsions aussi courtes. Aujourd'hui, des impulsions qui durent moins d'une centaine d'attosecondes ont par exemple permis de suivre en temps réel l'évolution d'un électron dans un atome ou une molécule.

En une trentaine d'années, les lasers femtosecondes ont conquis de nombreux laboratoires, permettant à la fois d'observer des phénomènes de plus en plus brefs et d'atteindre des densités de puissance élevées.

Le façonnage des impulsions laser, maintenant bien maîtrisé, permet de produire des impulsions très brèves et très intenses, de contrôler des réactions chimiques, d'observer des effets fondamentaux de l'interaction lumière-matière fondés sur des interférences quantiques, mais aussi d'améliorer grandement la sélectivité et la spécificité de l'imagerie biologique. Enfin, l'association du contrôle des impulsions courtes et des processus hautement non linéaires a donné naissance à l'« attophysique », la science des impulsions attosecondes.

D'autres applications se développent dans le domaine du codage de l'information. Des séquences d'impulsions façonnées ont été utilisées pour « imprimer » une information sur des atomes. En parallèle du façonnage dans le domaine fréquentiel, de nombreux travaux ont été faits dans le domaine spatial.

Combiné avec le contrôle spatial des impulsions, il permet de focaliser des impulsions dans des milieux très diffusants (voir l'article Voir à travers le brouillard dans ce numéro), ou d'atteindre des puissances laser inégalées. Enfin, avec le développement de la nanoplasmonique et des techniques d'imagerie électronique, il ouvre la voie au contrôle de la matière à l'échelle nanométrique. Le façonnage d'impulsions a encore un bel avenir. ■



2. EMBRYON DE DROSOPHILE en cours de développement observé en microscopie biphotonique avec des impulsions façonnées. L'embryon est marqué avec la protéine GFP (Green Fluorescent Protein) qui repère les noyaux cellulaires, mais présente aussi une fluorescence naturelle bleue dans les réserves vitellines internes. Des impulsions façonnées de façon à exciter sélectivement par absorption à deux photons soit les fluorophores bleus, soit les fluorophores verts, sont dirigées vers l'embryon. Deux images, enregistrées simultanément avec les deux formes d'impulsions, puis combinées, révèlent la distribution de la fluorescence naturelle des réserves vitellines en bleu et de celle de la GFP dans les noyaux en vert.