

Les lasers femtosecondes.

Nicolas GALLICE

sous la direction de Jin YU et Jean Pierre WOLF
au Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire de Lyon1.

Table des matières

Remerciements	2
Introduction	3
1 Principe d'une chaîne laser femtoseconde amplifiée.	4
1.1 L'oscillateur.	4
1.1.1 Principe général d'un laser.	4
1.1.2 Du blocage de modes aux lasers femtosecondes.	6
1.2 L'amplificateur.	7
1.3 L'étireur et le compresseur.	10
1.4 Les défauts.	11
1.4.1 La chaîne femtoseconde du LASIM et ses performances.	14
2 Instruments de caractérisation de l'impulsion.	15
2.1 De la puissance à l'énergie.	15
2.1.1 La puissance.	15
2.1.2 L'énergie.	15
2.2 La durée de l'impulsion.	16
2.2.1 Les méthodes électroniques.	16
2.2.2 Méthode optique: l'autocorrélateur.	17
2.3 Relation entre le spectre et la durée de l'impulsion.	19
3 Applications des lasers femtosecondes.	20
3.1 Déclenchement de la foudre [1].	20
3.2 Détection de la pollution atmosphérique [1].	22
3.3 Principe de l'ablation laser en régime femtoseconde.	24
3.4 Dynamique photochimique ultra-rapide.	25
3.4.1 Mouvement moléculaire cohérent des chaînes de polymère.	25
3.4.2 Dynamiques des électrons des nanoparticules métalliques.	26
3.5 Découpe au LASER femtoseconde.	26
Conclusion	29
Bibliographie	30

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier le professeur Jean Pierre Wolf de m'avoir accueilli au sein de son équipe au Laboratoire de Spectroscopie Ionique et Moléculaire (LASIM) de Lyon.

Le travail réalisé ici à Lyon, sur les lasers femtosecondes du LASIM et du Teramobile, a commencé durant mon stage de DEA jusqu'au début du mois d'août. Ainsi je tiens à remercier Jin Yu, Catherine Favre et Estelle Salmon qui, avec patience et persévérance, m'ont expliqués le fonctionnement des lasers femtosecondes, fait réfléchir sur des problèmes rencontrés au cours de ces mois, et qui m'ont permis de faire certains alignement sur ces chaînes lasers.

Introduction

L'invention en 1960 du laser [2] (*i.e.* light amplification by stimulated emission of radiation), a été une véritable révolution aussi bien scientifique qu'industrielle. En peu de temps, cet instrument s'est rendu indispensable dans des domaines aussi variés que la médecine, les communications ou encore la chimie moléculaire. Le laser a tout simplement aidé l'Homme, à étendre ses connaissances, et dans de nombreuses tâches pratiques tel que la découpe du bois et d'autres...

Le principe d'un laser consiste à créer et amplifier un faisceau de lumière cohérente. Pour générer un tel type de lumière, il faut trouver un système quantique dont la mécanique interne soit adapté. Il est nécessaire ensuite de créer un environnement où ils interviennent tous, en donnant toute leur énergie, au même moment et dans la même direction, par émission stimulée (sous forme de lumière). Le premier laser a fonctionné en 1960, et de constantes améliorations lui ont été apportées depuis. L'une d'entre elles, qui semble évidente aujourd'hui, provient du positionnement de deux miroirs à chaque extrémités de la cavité. La lumière passe ainsi plusieurs fois dans la cavité, et les faisceaux allant dans une autre direction ne sont pas amplifiés.

En 1988, au Lincoln Laboratory, des premières expériences sont réalisées avec comme milieu amplificateur le Titane Saphir. Les résultats prometteurs ont incité plusieurs fabricants à se lancer dans la production de ces cristaux. Entre 1989 et 1992, un programme Européen sur les chaînes d'amplification se développe. La première phase de ce programme consistait à accroître l'amplification déjà réalisée à l'aide de colorants. La deuxième phase tendait à développer une chaîne laser femtoseconde (c'est à dire un millionième de milliardième de seconde) dans les matériaux solides à large bande spectrale. Ainsi, en 1990, le premier oscillateur à Titane Saphir reposant sur la technique d'auto-blocage de modes voit le jour. Très vite, ce type d'oscillateur apparaît dans un grand nombre de laboratoires, ce qui est amplifié par leur commercialisation. Dès 1991, les chaînes d'amplification constituées de barreau de Titane Saphir sont elles aussi développées. Un phénomène nouveau apparaît, où les industriels et les laboratoires sont en concurrence directe au niveau des performances impliquant un développement rapide des lasers femtosecondes.

Dans une première partie, nous allons tout d'abord expliquer la constitution d'une chaîne laser femtoseconde et son fonctionnement. Différentes techniques de caractérisation de l'impulsion sont ensuite décrites. Une phase de caractérisation est en effet essentielle pour déterminer le bon alignement de la chaîne. De plus, les caractéristiques de l'impulsion sont nécessaires pour analyser les phénomènes engendrés dans un milieu par une telle impulsion. La dernière partie est, elle, consacrée à la description de quelques applications très diverses des lasers femtosecondes.

Chapitre 1

Principe d'une chaîne laser femtoseconde amplifiée.

Tous les éléments d'une chaîne femtoseconde sont schématisés sur la figure 1.1. Cette figure schématise l'évolution de la durée temporelle de notre impulsion ainsi que l'évolution de la puissance de celle-ci. Ainsi, mis à part les faisceaux de pompes, quatre types d'éléments ressortent : l'oscillateur, l'étireur, les amplificateurs et le compresseur. L'oscillateur crée l'impulsion qui avant et après avoir été amplifiée nécessite d'être respectivement étirée et compressée. Ce réarrangement de la durée temporelle de l'impulsion qu'opèrent l'étireur et le compresseur, permet respectivement d'avoir une amplification correcte et une impulsion avec une puissance crête maximale en sortie de chaîne.

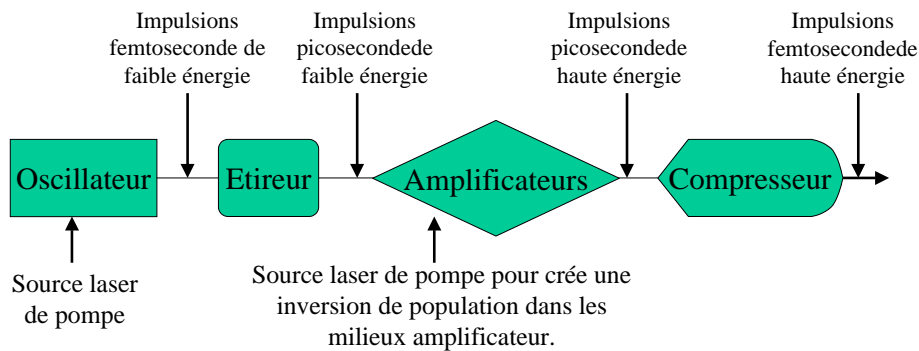


FIG. 1.1 – Schéma du principe laser.

Nous allons décrire tour à tour dans ce chapitre, chacun des éléments constitutifs de notre chaîne femtoseconde [3], en commençant par l'oscillateur.

1.1 L'oscillateur.

1.1.1 Principe général d'un laser.

De manière schématique, un laser peut être vu comme :

- un milieu amplificateur de gain G , de largeur spectrale $\Delta\omega$

- une source d'énergie extérieure (électrique, optique, chimique...) qui crée une inversion de population dans le milieu amplificateur
- et enfin un résonateur optique de longueur L , constitué dans sa forme la plus simplifiée, de deux miroirs de haut coefficient de réflexion placés face à face.

Après plusieurs passages dans la cavité résonnante, il se crée une onde cohérente de la même façon que dans un interféromètre de Fabry Pérot. La figure 1.2 présente l'intensité spectrale du laser. Le profil de la raie atomique est convolué par la courbe de transmission de la cavité résonnante de longueur L . Les modes effectivement transmis sont ceux dont l'intensité est supérieure aux pertes de la cavité. Ainsi, dans son mode de fonctionnement classique, un laser est constitué de plusieurs modes de fréquences $\mu_q = \frac{qc}{2L}$ où q est un entier.

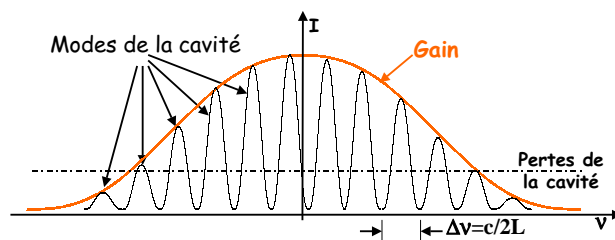


FIG. 1.2 – Sélection par la courbe de gain des modes existant dans la cavité de l'oscillateur.

Pour obtenir des impulsions laser très brèves, le principe de base consiste à synchroniser la phase des différents modes. Si L est la longueur du résonateur, le champ électrique total $E(t)$ est une superposition de modes d'amplitude A_n et de phases ϕ_n . Les propriétés temporelles du champ total sont alors déterminées par la statistique de la distribution des phases. Une situation défavorable correspond à une distribution aléatoire de ces phases. Par contre, si l'on synchronise les phases (blocage de modes), le champ $E(t)$ correspond à une impulsion d'autant plus brève que le milieu amplificateur possède une large bande $\Delta\Omega$. En effet, plus le nombre N de modes qui interfèrent est grand, plus la durée τ de l'impulsion est courte comme le montre l'équation ci-dessous:

$$\Delta\tau = \frac{4\pi L}{Nc}$$

. En pratique, le nombre de modes est très variable selon les milieux: de 1 pour un laser He-Ne à 10^4 pour un cristal Ti:Sa.

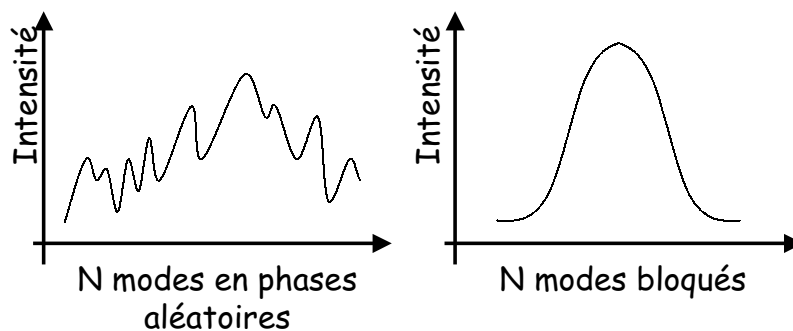


FIG. 1.3 – Comparaison de l'intensité du faisceau pour N modes en phase aléatoire et N modes bloqués.

La figure 1.3 nous montre quelle est la différence entre N modes bloqués et N modes avec une phase aléatoire, et l'importance de ce résultat dans la configuration modes bloqués. Nous allons maintenant voir comment obtenir un tel blocage de modes.

1.1.2 Du blocage de modes aux lasers femtosecondes.

Différents mécanismes de blocage de modes sont utilisés en pratique. On distingue le blocage actif, obtenu par exemple en utilisant un dispositif acousto-optique et le blocage passif, lorsque l'on utilise un absorbant saturable dans la cavité. Je vais développer un peu plus particulièrement l'auto-blocage de mode, troisième technique au départ nommée "magic mode locking" en raison de son caractère, au départ, inexplicable. L'auto-blocage de mode résulte de la propagation non linéaire de l'impulsion dans la cavité laser et plus particulièrement dans le milieu amplificateur. Lorsque l'intensité de l'impulsion est suffisamment grande, l'indice du milieu ne peut plus être considéré comme constant, mais au contraire il dépend linéairement de l'intensité de l'impulsion selon l'équation suivante :

$$n = n_0 + n_2 I \quad (1.1)$$

où n_0 et n_2 sont respectivement les indices linéaire et non linéaire. C'est l'effet Kerr. Si l'impulsion incidente présente un profil spatial non uniforme (une gaussienne par exemple), il s'en suivra un gradient d'indice dans le milieu qui permet d'assimiler celui-ci à une lentille convergente. L'impulsion se focalise. On parle alors d'autofocalisation.

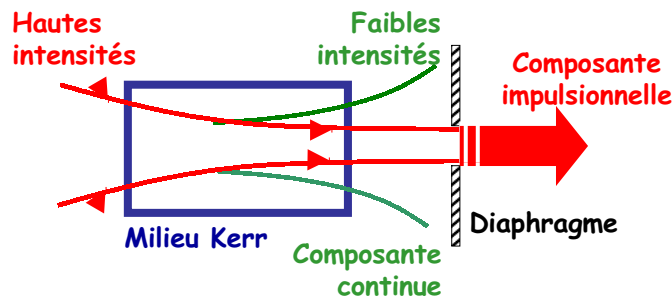


FIG. 1.4 – *Le faisceau de forte intensité est bien plus focalisé par effet Kerr que l'autre qui est moins intense.*

L'autofocalisation est un phénomène dont l'importance dépend de l'intensité. Ainsi, comme le montre la figure 1.4, les fortes intensités (impulsion courte) vont être beaucoup plus focalisées que les faibles intensités (impulsion longue) pour lesquelles le phénomène est même négligeable. Or, ces fortes intensités, dont l'extension spatiale vient justement d'être réduite, sont proportionnellement moins affectées par les pertes de la cavité. Celles-ci sont donc favorisées par rapport aux faibles intensités. De plus, en rajoutant une fente dans la cavité laser, on peut encore augmenter les pertes subies par les faibles intensités qui constitue la partie continue de l'impulsion par rapport aux fortes intensités qui sont favorisées et représente la partie impulsionnelle du faisceau laser .

L'effet Kerr 1.1 qui accompagne la propagation de l'impulsion dans une cavité se manifeste spatialement mais aussi temporellement. L'indice, dans les zones de faible éclaircissement (pieds de l'impulsion) est différent de celui vu par l'impulsion de fort éclaircissement (à son sommet). Ainsi, l'indice ressenti par l'impulsion évolue lors de son passage. Ceci correspond à un

couplage entre l'onde porteuse (espace des fréquences) et l'enveloppe du champ (espace des temps) qui se traduit par la génération de fréquences sur le front montant et descendant de l'impulsion, comme nous pouvons le voir dans les équations suivantes :

$$\Phi = \omega_0 t - \frac{\omega_0 t}{c}(n_0 - n_2 I)\Delta\omega = \omega_0 n_2 \frac{dI}{dt} L \quad (1.2)$$

Ce phénomène traduit mathématiquement par les équations 1.2, conduit à élargir le spectre des impulsions bien au delà du spectre naturellement émis en mode continu, s'appelle automodulation de phase et est représenté sur la figure 1.5.

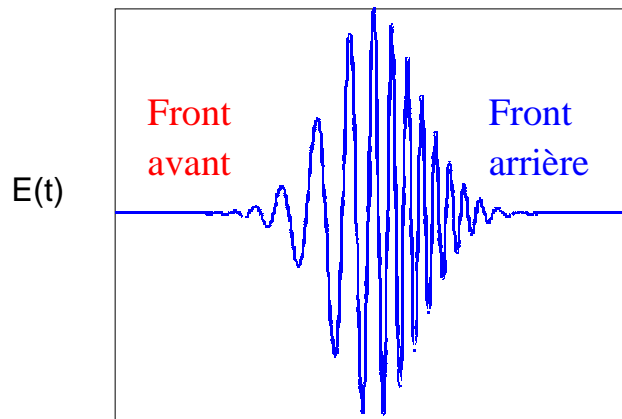


FIG. 1.5 – Schéma présentant la génération de nouvelles fréquences par l'automodulation de phase.

Ce phénomène élargit spectralement notre impulsion, c'est à dire qu'il diminue la durée temporelle de celle-ci. En sortie de l'oscillateur, les impulsions sont donc femtosecondes, mais leur intensité n'est pas suffisante, d'où la nécessité de prévoir une chaîne d'amplification.

1.2 L'amplificateur.

L'objectif d'un amplificateur est contenu dans son nom. Deux voies différentes sont envisagées pour la réalisation des amplificateurs :

- la technique d'amplificateur régénératif utilise des éléments actifs (cellule de Pockels) basés sur le principe de multiplexage temporel;
- quant aux amplificateurs multipassages, ils utilisent le principe du multiplexage angulaire déjà employé dans les amplificateurs à colorants.

La figure 1.6 a) schématise un amplificateur régénératif. Son principe est basé sur le piégeage d'une impulsion dans une cavité laser. L'impulsion est piégée après un certain délai τ_1 correspondant à l'inversion de la population maximale du milieu amplificateur. Une fois piégée, elle est maintenue dans le résonateur jusqu'à ce que son amplification soit maximale. Au moyen d'une cellule de Pockels on règle le temps correspondant à l'éjection de l'impulsion hors du résonateur (délai τ_2). Et suivant la valeur de cette dernière, l'appareil induit ou non une modification de la polarisation du faisceau. Ainsi, l'ensemble formé d'une cellule de Pockels et d'un polariseur (placé à l'angle de Brewster), joue le rôle d'interrupteur optique,

permettant de piéger ou d'éjecter l'impulsion de la cavité régénérative. Quand la haute tension n'est pas branchée (HT_{off}) la cellule de Pockels est équivalente à une lame quart-d'onde et l'impulsion est piégée; quand elle est sous tension (HT_{on}), elle se comporte comme une lame demi-onde et elle est éjectée. Certaines cellules de Pockels ne fonctionnent pas de la même façon mais le principe de l'interrupteur optique reste le même.

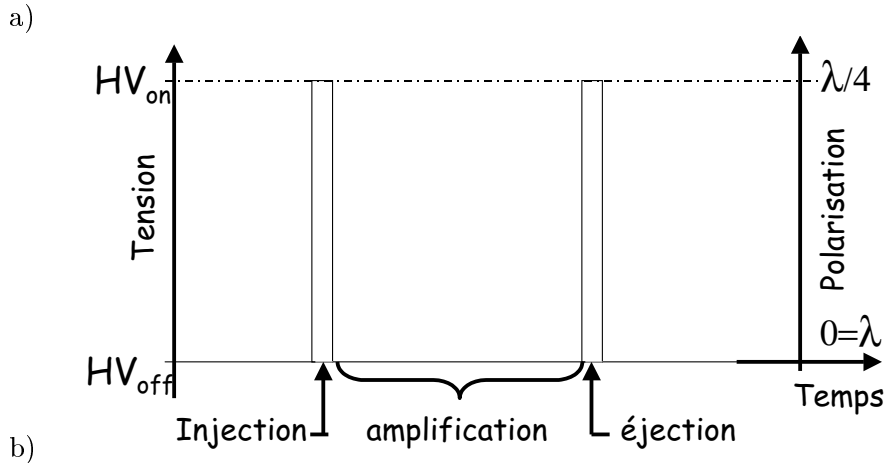


FIG. 1.6 – Le schéma a) représente l'amplificateur régénératif muni d'un cristal Ti:Sa. Le schéma b) montre lui que la haute tension appliquée à la cellule de Pockels change les propriétés de la lame (onde ou quart d'onde). De ce fait l'impulsion est soit piégée dans la cavité soit éjectée.

L'alignement d'un tel élément est plus simple que celui de l'amplificateur multipassages. Mais inversement, la cavité régénérative nécessite des optimisations fréquentes afin d'optimiser ses performances, alors que l'amplificateur multipassages (amplificateur papillon) que nous allons décrire par la suite, est stable pendant plusieurs mois.

L'amplificateur multipassages, comme son nom l'indique, a comme principe de faire passer plusieurs fois le faisceau dans le cristal amplificateur. Ces amplifications successives se font en un même point du cristal Ti:Sa. Les différents chemins optiques entre chaque amplifications sont séparés géométriquement comme nous le montre le schéma 1.7. Ainsi, de part la difficulté croissante de focaliser à chaque fois le faisceau en un seul point du cristal, le nombre d'amplifications est limité. De ce fait, même si le système optique est plus stable, il nécessite un réglage fin. Dans le but de garder un fort gain, cette technique simple et peu

chère, fonctionne près du seuil de dommage du cristal.

FIG. 1.7 – *Schéma de l'amplificateur multipassage.*

Les amplificateurs présentés ici (régénératifs et multipassages) peuvent être utilisés pour n'importe quel type d'impulsion et de milieu amplificateur. Ainsi, ils ne sont pas spécifiques des impulsions ultra-courtes. Toutefois, lorsque des impulsions femtosecondes doivent être amplifiées, des problèmes nouveaux surviennent.

Tout d'abord, la largeur de bande de l'amplificateur doit être assez large pour amplifier tout le spectre de l'impulsion. Ceci amène l'impulsion à voir le milieu amplificateur comme un filtre spectral. Ainsi, après chaque passage, les longueurs d'onde correspondant au pic du gain sont plus amplifiées que celles situées sur les bords de la courbe de gain. Celui-ci réduit donc les ailes du spectre de l'impulsion, tout en influant peu sur sa partie centrale. D'autres éléments influent sur le spectre, les miroirs en général peuvent être les précurseur de cet effet. Afin de limiter le problème, on traite leur surface afin d'avoir une réflexion totale sur une bande spectrale supérieure à 200 nm. Quant aux polariseurs, ils existent sur des bandes spectrales supérieures à 100 nm, mais les cellules de Pockels, auxquelles sont appliquées une tension $V_{\lambda/4}$ proportionnelle à la longueur d'onde, constitue un filtre spectral incontournable. Toutefois dans ce cas, la réduction est encore acceptable pour des spectres de 50 nm autour de 800 nm, puisqu'elle est de 5/100 pour 15 passages.

Un second problème provient des intensités de ces impulsions ultra-courtes. En effet, elles peuvent dépasser le seuil de dommage des matériaux amplificateurs. Pour le résoudre, il faut étendre temporellement le faisceau à l'aide d'un étireur. Après l'amplification, l'opération inverse sera réalisée à l'aide d'un compresseur. Celui-ci est aussi utilisé pour compenser une partie des dispersions résiduelles introduites par les traversées successives, des cristaux amplificateurs Ti:Sa.

Nous allons maintenant nous intéresser aux deux éléments de la chaîne laser qui étire et compresse notre impulsion.

1.3 L'étireur et le compresseur.

Ces deux éléments jouent tous deux sur la durée temporelle de l'impulsion. Ils reposent sur le même principe: la dispersion. Tous les milieux dispersent l'impulsion, c'est à dire que les vitesses dépendent des longueurs d'onde $v = c/n(\lambda)$, où c est la célérité de l'air et $n(\lambda)$ est l'indice du milieu. Un milieu d'indice n peut donc être utilisé dans un laser. Ainsi, en faisant passer une impulsion de durée 100 fs dans une cuve longue de 50 cm d'alcool éthylique, celle-ci s'élargit jusqu'à 400 fs. Les composantes en fréquence ne sont plus synchrones après la traversée du milieu, elles sont distribuées dans le temps à l'intérieur de l'enveloppe temporelle, les plus grands λ vers l'avant et les plus courtes λ à l'arrière. Nous n'optons pas pour l'utilisation de la dispersion de la lumière dans un milieu. En effet, cette dispersion est moins importante que celle engendrée par une prisme et encore plus faible que celle due au réseau. Dans notre cas nous utilisons ce dernier, de sorte que la lumière polarisée incidente voit les pas de celui-ci. Toutefois, si un réseau ou un prisme les longueurs d'onde sont séparées, elles divergent également les unes des autres. Pour compenser cet effet, on utilise en fait deux réseaux image l'un de l'autre par un miroir. Une autre configuration ne nécessitant qu'un seul réseau peut également être envisagée. Elle met en jeu un miroir (moins coûteux qu'un réseau) créant une image virtuelle du premier réseau à l'endroit où devrait se situer le deuxième. Avec ce système, on peut obtenir en sortie une succession de longueurs d'onde qui se suivent dans le temps avec la même direction spatiale.

L'étireur et le compresseur produisant des effets opposés sur la durée de l'impulsion, leur montage respectif est inverse l'un de l'autre.

FIG. 1.8 – *Principe d'un étireur, formé de deux réseaux (image l'un de l'autre dans un miroir).*

Le principe de l'étireur utilisant deux réseaux est représenté sur la figure 1.8. Nous remarquons qu'après deux réflexions sur les réseaux, les deux longueurs d'onde sont séparées temporellement et spatialement. Le miroir les renvoie pour une troisième et quatrième réflexion sur les réseaux, engendrant en sortie une séparation uniquement temporelle des longueurs d'onde. Le compresseur compense l'effet de l'étireur et sert aussi à compenser les dispersions temporelles que rencontre l'impulsion lors de son amplification. Pour cela un dièdre mobile est nécessaire,

et via sa translation, une compression optimale peut être atteinte en sortie de chaîne.

FIG. 1.9 – *Principe général d'un compresseur. Le dièdre se translate parallèlement au faisceau.*

1.4 Les défauts.

Les défauts intervenant sur l'impulsion sont aussi bien spatiaux que temporels. Ils sont du même type, mais se trouvent dans deux espaces différents. Nous allons regarder les défauts temporels de notre impulsion en sachant que les analogues existent pour les défauts spatiaux. Il est tout d'abord important de considérer la chaîne comme un ensemble formé d'un étireur, d'un amplificateur et d'un compresseur. Chacun de ces appareils apportent des défauts à l'impulsion sous la forme d'un déphasage. Si la chaîne est parfaitement alignée, la somme des déphasages apportés par chacun de ces éléments est nulle :

$$\Phi_{tot}(\omega) = \Phi_{étireur}(\omega) + \Phi_{ampli}(\omega) + \Phi_{compresseur}(\omega) = 0 \quad (1.3)$$

Dans l'équation 1.3, le déphasage apporté par le compresseur et par l'étireur est essentiellement dû aux réseaux, alors que dans les amplificateurs, l'indice des cristaux $n(\omega)$ est la principale cause de ce déphasage. Dans la suite, seuls quelques types de défauts attireront notre attention.

Dans un compresseur ou un étireur classique, formé de deux réseaux (images l'un de l'autre dans un miroir), le pas entre les traits, le parallélisme entre les deux réseaux, ainsi que la distance L entre ceux-ci, influencent la dispersion occasionnée. Si le pas d'un réseau ne peut être réglé, le parallélisme et L permettent l'obtention d'une compression optimale à la sortie de la chaîne. Le plus souvent, le parallélisme se règle une fois pour toute et seule L sert à obtenir un $\Phi_{tot}(\omega) = 0$. Si les réseaux ne sont pas parfaitement parallèles, nous obtenons une

onde inhomogène, c'est à dire que la phase et l'amplitude de cette onde ne se propagent pas parallèlement, ce qui est visible sur la figure ???. Cette inhomogénéité utile dans l'élaboration des lasers X, n'est pas souhaitée dans notre cas.

D'autres facteurs dus aux imperfections des lentilles ou à d'autres éléments optiques ont une influence sur l'aspect spatial et spectral de l'impulsion. Ces imperfections se manifestent par des déphasages d'ordre supérieur à 1. Nous allons donc tout d'abord nous intéresser au cas parfait (*i.e.* $\Phi_{tot}(\omega) = 0$), où une correspondance directe entre les temps et les pulsations du train d'onde existe, c'est à dire que les pulsations sont réparties de façon homogène dans l'impulsion, comme nous le montre la figure 1.10.

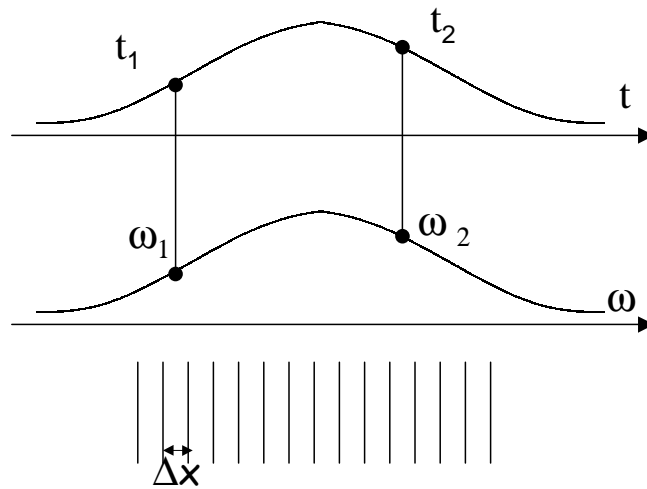


FIG. 1.10 – Ce schéma nous montre la répartition des pulsations dans une impulsion. Il précise que dans un cas optimal une correspondance existe entre le temps et la pulsation contenue dans l'impulsion.

Les déphasages avec différents ordres sont possibles. Au premier ordre, *i.e.* Φ_1 , notre impulsion ne fait qu'être retardée. Mais, pour les ordres de déphasage supérieur, la forme de l'impulsion est modifiée par les ordres pairs, alors que les ordres impairs rajoutent des pré-pulses à notre impulsion et jouent donc sur le contraste, comme nous pouvons le voir sur la figure 1.11a) et 1.11b). Le contraste se définit par la différence entre le maximum de l'impulsion et celui des pré-pulses, c'est à dire qu'il définit l'importance de ces pré-pulses par rapport à notre

impulsion principale.

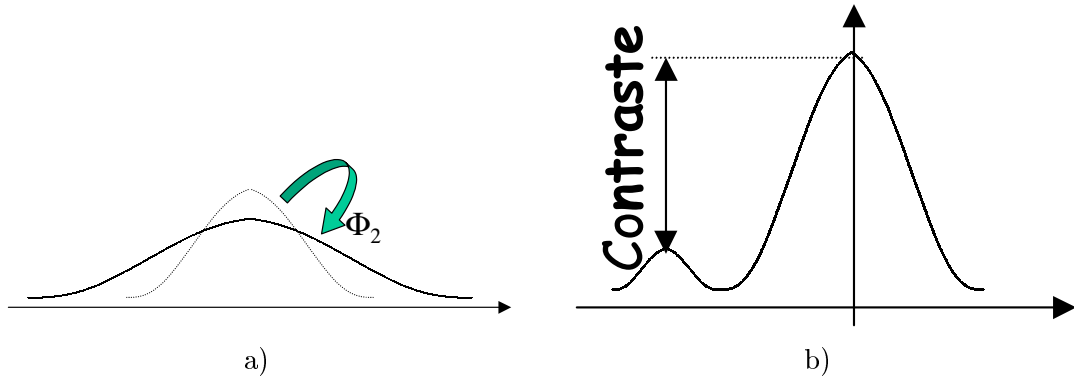


FIG. 1.11 – Représentation des défauts occasionnés par un déphasage d'ordre deux et trois correspondant respectivement à un élargissement de l'impulsion a) et à l'apparition de pré-pulse b).

Les pré-pulses sont gênants, car ils produisent un effet non souhaité avant que la vraie impulsion agisse. Ainsi, dans certains cas, des plasmas sont créés par ces pré-pulses et le reste de l'impulsion est diffractée sur ce plasma.

Une autre image des défauts rencontrés provenant d'un mélange des défauts spatial et spectral de l'impulsion est explicitée sur la figure 1.12. Sur la figure 1.12 a), nous pouvons voir la section de notre faisceau laser dans lequel nous prenons trois points où la lumière est analysée; toutes les longueurs d'onde contenues dans l'impulsion sont détectées dans chacun de ces points de mesures. Contrairement à ce résultat, la figure 1.12 b) schématise trois points de mesure contenant des longueurs d'onde différentes. Ceci est dû aux défauts spatiaux et temporels, que l'impulsion acquiert lors de son passage dans la chaîne.

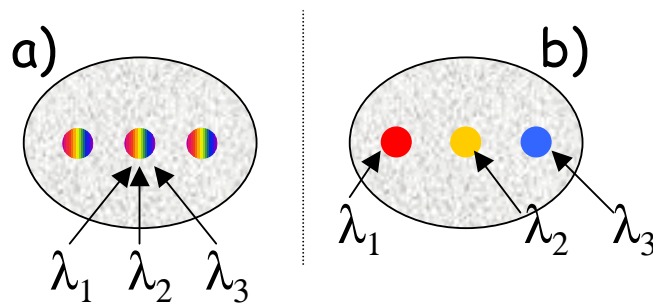


FIG. 1.12 – Mélange des défauts spatiaux et temporels détectable dans la section du faisceau b), avec une comparaison au cas idéal a).

Ce paragraphe, nous donne une idée sur les problèmes rencontrés et sur la précision des réglages à effectuer sur un laser pour le mettre en route chaque jour, et obtenir un faisceau propre servant à réaliser les expériences prévues.

1.4.1 La chaîne femtoseconde du LASIM et ses performances.

Le schéma de principe de la chaîne femtoseconde du LASIM représenté par la figure 1.13 montre l'effet réel qu'ont les différents éléments de la chaînes laser. Grâce aux chiffres qui sont marqué sur ce graphique nous pouvons voir toute l'importance de l'étireur et du compresseur qui agisse sur la durée temporelle de l'impulsion d'un facteur multiplicatif 10^{-5} . Et les amplificateurs régénératif et multipassages permettent d'atteindre une puissance de 60 GW (environ 8 mJ par impulsion) en sortie de chaîne alors qu'en entrée de celle-ci nous avions seulement 150 mW.

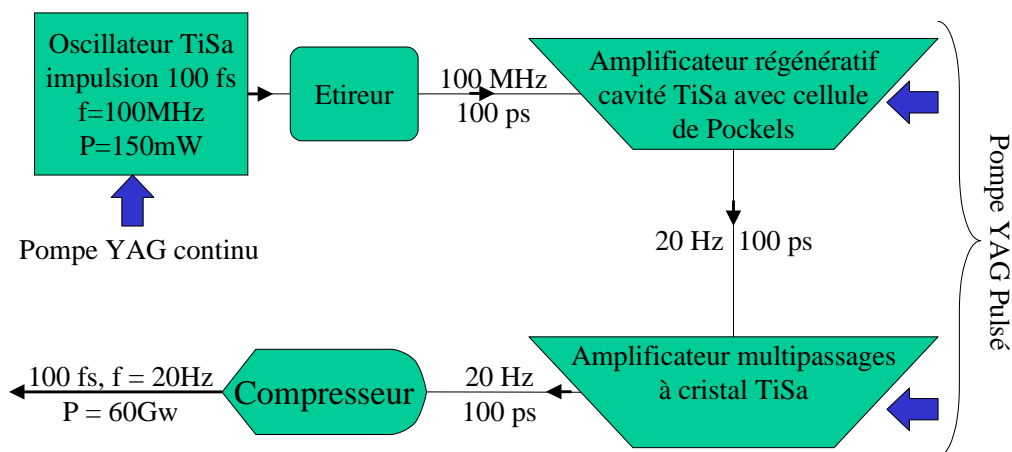


FIG. 1.13 – Schéma de fonctionnement de la chaîne femtoseconde du LASIM ainsi que ces caractéristiques.

On peut néanmoins noter un paradoxe de taille dans le fait que ces lasers ne délivrent pas beaucoup plus de puissance moyenne que les lasers HeNe continu ($P = 10 \text{ mW}$). Mais en revanche, de par l'extrême brièveté temporelle de l'impulsion, celle-ci acquiert une puissance crête de l'ordre du terawatt (puissance mille fois supérieure à celle délivrée par celle d'une centrale nucléaire).

Chapitre 2

Instruments de caractérisation de l'impulsion.

2.1 De la puissance à l'énergie.

2.1.1 La puissance.

Pour des systèmes lasers à modes bloqués fonctionnant à haut taux de répétition, la mesure de la puissance moyenne est le seul moyen d'avoir l'amplitude de l'impulsion, en connaissant toutefois le profil temporel du train d'impulsion, *i.e.* sa durée, la répétition et la stabilité du faisceau à la sortie du laser. Le détecteur photo-thermo-électrique que nous utilisons en sortie de chaîne pour connaître la puissance, intègre le signal dans le temps, ainsi, le signal électrique produit reflète l'équilibre atteint par le matériel lorsqu'il est illuminé quasiment en permanence par le laser. Dû au fait que notre détecteur est thermique, le temps nécessaire pour faire une mesure est important.

Ce type de détecteur peut être remplacé par une photodiode ayant une large bande spectrale de détection et une réponse de l'ordre de la nanoseconde. Un tel détecteur accroît la rapidité de réglage d'une chaîne laser, mais sa sensibilité aux longueurs d'onde ainsi que son bas seuil de dommage, font que son utilisation se peut se faire que sur des fuites du faisceau laser. Dans tout les cas, elle ne donne pas une mesure précise qui doit être faite par puissancemètre.

2.1.2 L'énergie.

Pour déterminer l'énergie, un système pyroélectrique peut être employé. Il ne nécessite qu'une seule impulsion laser. La température du détecteur donne un signal électrique proportionnel à l'énergie déposée par l'impulsion lors de son passage dans le cristal. L'effet thermique est un phénomène lent, si bien que ce genre de détecteur peut être utilisé aussi avec un tir de laser ou à un taux de répétition faible.

Mais si la caractéristique temporelle du laser est connue (ce qui est généralement le cas), l'énergie peut se déduire de la valeur de la puissance mesurée, comme nous l'avons fait remarquer dans le paragraphe précédent.

2.2 La durée de l'impulsion.

La durée de l'impulsion est une caractéristique de l'oscillateur que nous avons considéré connue dans le paragraphe 2.1, mais il est nécessaire de mesurer cette durée pour être sûr de la stabilité de l'oscillateur. De plus, une bonne caractérisation du profil temporel de l'impulsion est nécessaire pour toute optimisation du système laser et pour toute expérience utilisant une impulsion ultra-courte. Malheureusement le temps de réponse des photodétecteurs classiques est de l'ordre de la picoseconde, ce qui ne permet donc pas de mesurer directement des impulsions femtosecondes. Nous verrons toutefois dans la partie traitant de l'autocorrélateur 2.2.2, comment, un montage optique astucieux, mesure des impulsions d'une durée de quelques centaines de femtosecondes. Mais nous allons tout d'abord aborder les méthodes purement électroniques.

2.2.1 Les méthodes électroniques.

Les photodiodes.

L'effet photoélectronique nécessite comme nous le savons des photons possédant une énergie supérieure au gap que les électrons ont à franchir dans la photodiode. De plus, comme chacun des électrons traverse ce gap avec la même vitesse, l'association des photodiodes à un oscilloscope permet de bien visualiser l'enveloppe du train d'onde. La limite d'utilisation d'une photodiode est atteinte autour d'une dizaine de picosecondes. Pour tenter de parer à cette limitation, les semiconducteurs et des photodiodes à avalanche sont utilisés pour mesurer respectivement des impulsions plus courtes temporellement et des impulsions spatialement plus larges.

Streak Camera.

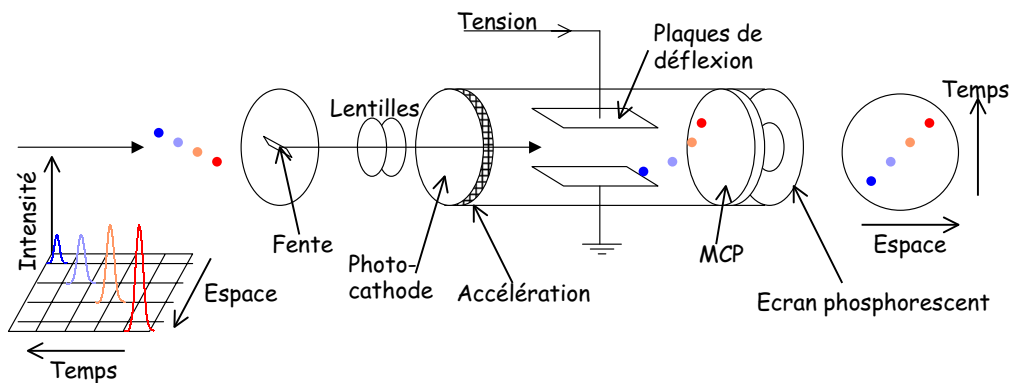


FIG. 2.1 – Schéma de principe de la Streak Camera qui permet de résoudre dans le temps et en amplitude l'impulsion étudiée.

La figure 2.1 présente le fonctionnement d'une Streak Camera. Le signal lumineux est focalisé par des lentilles sur une photocathode. Les électrons sont ensuite accélérés puis déviés lors de leur passage entre les plaques de déflexion. Connaissant de la variation de tension appliquée entre ces plaques en fonction du temps, on peut remonter, via la déviation subie par les

électrons à l'évolution du nombre d'électrons en fonction du temps. Les électrons viennent ensuite frapper un écran phosphorescent pour former ainsi des taches dont la couleur reflète le nombre d'électrons. Il est ainsi possible de remonter à l'intensité de notre impulsion, via la couleur, et de spécifier dans le temps à quelle partie de l'impulsion ils correspondent, via la déflexion observée.

Cet instrument permet ainsi d'étudier les phénomènes ultra-rapides de durée supérieure à la picoseconde.

2.2.2 Méthode optique : l'autocorrélateur.

Les systèmes que nous avons décrit précédemment, sont limités à une durée d'impulsion de quelques centaines de femtosecondes. La méthode décrite ici [4] est indirecte et nécessite l'utilisation d'un modèle pour retrouver la forme de l'impulsion. Mais celle-ci est une méthode totalement optique.

Le principe.

Le principe général prend en compte deux éléments. Le premier utilise des transformations temps-espace, et se base sur le fait que la lumière ne met qu'une picoseconde pour parcourir 300 μm dans l'air (distance facile à mesurer et calibrer). Le deuxième élément important est la fonction de corrélation qui nous donne la relation entre deux fonctions $F(t)$ et $F'(t)$ dépendantes du temps. Si l'une d'entre elles, $F'(t)$, est connue, nous trouvons directement l'autre par la mesure de $G(\tau)$, défini comme la fonction de corrélation du premier ordre

$$G(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} F'(t)F(t - \tau) dt.$$

La figure 2.2 schématise le montage utilisé pour construire cette fonction de corrélation. Il s'agit d'un simple interféromètre où le délai τ introduit entre les deux ondes est réglable.

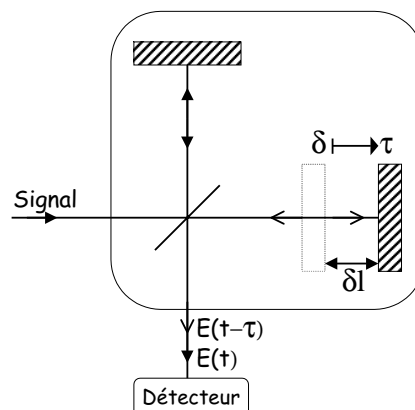


FIG. 2.2 – Schéma de l'interféromètre de Michelson, dont le principe est utilisé pour la mesure de la fonction d'autocorrélation

La technique interférométrique nous permet d'accéder facilement au champ électrique $E(t)$ qui joue le rôle de la fonction $F(t)$ précédente. Habituellement l'intensité est définie par

$I(t) = \langle E(t).E^*(t) \rangle$ et l'évolution de l'impulsion est caractérisée par les équations de Maxwell. L'intensité détectée dans la figure 2.2 en fonction de τ est :

$$I_1(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t) + E(t - \tau)|^2 dt.$$

À l'aide de l'expression du premier ordre d'autocorrélation $G(\tau)$, nous obtenons $I_1(\tau) \propto 2 \int I(t) dt + 2G(\tau)$. Par conséquent, les fonctions d'autocorrélation $G_n(\tau)$, ou de façon équivalente des $I_n(\tau)$, permettent à elles seules une pleine connaissance de $E(t)$.

Le premier ordre d'autocorrélation est trouvé à la sortie du Michelson et la largeur de $I_1(t)$ est liée à la longueur de cohérence de l'impulsion [5], [6]. De part la connaissance des transformées de Fourier, ce signal est analogue au spectre d'une lumière blanche. Celui-ci a en effet, une longueur de cohérence très courte, mais ne représente pas la signature d'une impulsion courte. Maintenant, si la lumière provient d'une impulsion laser, une relation existe entre la longueur de cohérence et la durée de l'impulsion, connu à travers la phase de $E(t)$. Théoriquement, tous les ordres des G_n sont nécessaires, mais heureusement l'analyse des résultats en n'utilisant que le deuxième ordre G_2 et une enveloppe donnée et réaliste de l'impulsion, suffisent. Ces approximations nous donnent une idée qui n'est pas réelle, mais qui peut être croisée avec d'autres approches plus sophistiquées. Une adaptation des montages de détection de la fonction d'autocorrélation permettent une mesure des ordres supérieurs. Nous allons décrire l'une d'entre elle, réalisée à l'aide du corrélateur optique monocoup. Les autres méthodes qui se placent dans le domaine temporel (Technique Frequency Resolved Optical Gating) ou fréquentiel, permettant d'obtenir directement la phase et l'amplitude, ne seront pas décrites ici.

Corrélation optique monocoup.

Ce corrélateur monocoup auquel nous allons nous attacher maintenant, fonctionne pour un taux de répétition de quelques dizaines de Hertz et s'oppose ainsi au corrélateur multicoup qui lui est utilisable pour un taux de répétition de l'ordre du méga-Hertz.

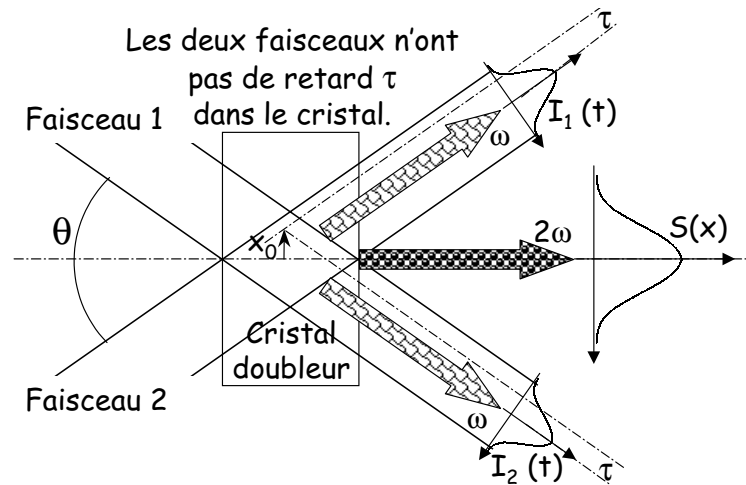


FIG. 2.3 – Principe de fonctionnement du corrélateur monocoup. Deux faisceaux cohérents et provenant de la même source, interfèrent dans un cristal doubleur. À la sortie, seul le signal de seconde harmonique est détecté.

Le principe d'un tel appareil [4] est présenté sur la figure 2.3. Il prend en compte le signal de deuxième harmonique créé par deux impulsions qui ont été séparées préalablement, et qui arrivent de façon **synchrone** dans le cristal doubleur. Ainsi, les deux faisceaux ne sont pas décalés dans le temps et ne peuvent donc pas interférer. Le signal $S(x)$, détecté à la sortie du cristal doubleur, est celui de la forme spatiale de la seconde harmonique. Au point d'abscisse x_0 la valeur de la seconde harmonique est proportionnelle à $I_1(t + \tau)I_2(t - \tau)$ où le délai τ est directement relié à la position x_0 comme nous pouvons le voir sur la figure 2.3 et à travers la l'expression :

$$\tau = \frac{x_0 \sin(\theta/2)}{c},$$

où θ est l'angle entre les deux faisceaux et c la vitesse de la lumière dans le vide [5]. De là, pour remonter jusqu'à la durée de l'impulsion, il faut déconvoluer $S(x)$ en faisant une hypothèse sur sa forme et estimant la valeur de sa largeur. Tout ceci ne peut être fait qu'après avoir étalonné la fonction d'autocorrélation. Le plus souvent, la déconvolution effectuée correspond à la sécante hyperbolique au carré, qui représente le meilleur rapport $\Delta\tau/\delta t$ et qui s'approche le plus de la forme de l'émission laser.

2.3 Relation entre le spectre et la durée de l'impulsion.

Cette partie bien que courte est essentiel. Jusqu'à maintenant nous avons vue que la durée temporelle de l'impulsion est difficile à mesurer expérimentalement. Ainsi grâce à la relation d'incertitude qu'il existe entre le spectre et la durée temporelle de l'impulsion 2.1, il est possible de connaître la durée temporelle, en ne connaissant au préalable que la largeur spectrale de l'impulsion.

$$\Delta\nu \cdot \Delta\tau, eq \alpha \tag{2.1}$$

La valeur de α , dans l'équation 2.1, varie en fonction de la forme l'impulsion choisie. Cette relation est explicitée dans beaucoup d'ouvrage pour toute sorte de forme d'enveloppe de l'impulsion [4]. Ainsi en analysant la largeur du spectre par des méthodes classiques et simples nous pouvons remonter facilement à la caractéristique temporelle de notre impulsion.

Chapitre 3

Applications des lasers femtosecondes.

Différentes applications vont être décrites par la suite. Les deux premières ont été réalisées à l'aide du laser du projet Teramobile (de durée d'impulsion 120 fs, d'énergie 8 mJ, et de puissance crête 60 GW). Ce laser a été intégré dans un conteneur climatisé pour assurer la stabilité et la transportabilité de toute la chaîne. Ainsi des expériences de terrain peuvent être réalisées.

3.1 Déclenchement de la foudre [1].



FIG. 3.1 – *La foudre.*

Les moyens actuels de protection contre la foudre (paratonnerre, parafoudre et blindages électriques) ne s'avèrent pas fiables à 100 % : en effet, malgré ces systèmes de protection, le champ électrique très haute fréquence de la foudre peut créer des incidents de réseau ou des surtensions.

De façon grossière, la foudre est la conséquence d'accumulation de charges positives au sol

et de charges négatives dans la partie inférieure des nuages. Le champ électrique créé dans les nuages produit des cascades électroniques, provoquant aussi des étincelles et des plasmas (conducteurs électroniques). L'amplification de ces phénomènes crée des traceurs se déplaçant à une vitesse de 10 à 20 $km.s^{-1}$. Ainsi, grâce à ces traceurs, une connexion est possible entre les décharges électriques qui se propagent dans les nuages et l'accumulation de charges opposées au sol. Des traceurs partent aussi du sol mais ils sont bien moins importants.

Le développement récent des lasers femtosecondes amplifiés ouvre de nouvelles perspectives. Ils possèdent en effet une durée d'impulsion extrêmement courte (10^{-13} s) et une grande puissance instantanée (quelques terawatts), produisant ainsi de nouveaux modes non linéaires de propagation dans l'atmosphère tel que l'effet Kerr que nous avons décrit précédemment. Lors d'une propagation dans l'air, cet effet Kerr focalise notre faisceau laser, et une intensité crête suffisamment élevée est atteinte qui produit une ionisation de l'air. Ce canal de plasma se prolongera le long de la direction du faisceau laser, créant ainsi un filament conducteur électrique.

Différentes équipes considèrent une configuration simple de décharge en laboratoire, mettant en oeuvre deux électrodes chargées et séparées par une distance empêchant toutes décharges entre celles-ci. La figure 3.2 présente l'expérience réalisée, en juin 2001 à Berlin, à l'aide du système laser mobile, femtoseconde et térawatt du Teramobile.

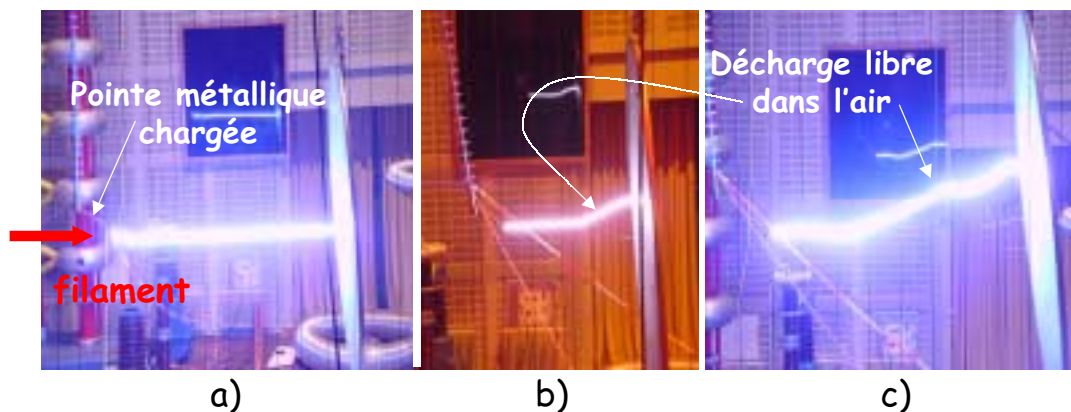


FIG. 3.2 – Photographies prises à Berlin en Juin 2001, représentant la décharge entre deux électrodes. L'une d'entre elle est une sphère métallique et l'autre une plaque. Ces électrodes sont suffisamment éloignées pour que le seuil de claquages dans l'air ne soit pas atteint. Le seul lien entre elles, est un fin canal de plasma engendrée par un laser femtoseconde et térawatt, qui passe près de la sphère et, à travers un petit orifice fait dans la plaque.

Nous pouvons remarquer sur la photographie 3.2a) que la décharge utilise le filament (canal ionisé) pour atteindre l'autre électrode. Sur ces photographies 3.2, nous pouvons voir que même si le canal de plasma ne lie pas les deux électrodes celui-ci est néanmoins nécessaire pour réduire le seuil de claquage entre les deux électrodes. Ceci se voit sur les photographies 3.2b) et 3.2c), où la décharge, après avoir été guidée par le canal ionisé, évolue librement dans l'air jusqu'à atteindre l'électrode.

Il s'agit donc d'un nouveau domaine d'application des lasers femtosecondes que les chercheurs sont en train d'explorer, et dont l'une des perspectives consisterait à déclencher et à guider la foudre grâce à ce faisceau laser de haute puissance, jouant le rôle du traceur

dominant en provenance du sol.

En effet, l'ionisation se produit le long du faisceau formant un fil conducteur qui relie le nuage chargé et le paratonnerre classique. Nous pouvons donc imaginer un dispositif comprenant un tel laser et un radar météorologique (permettant de détecter les nuages chargés) qui déclencherait la décharge de foudre des nuages à risques. Les deux points clefs pour qu'un tel système soit valable sont : un système laser mobile qui produit des impulsions intenses, un dispositif optique permettant le contrôle précis de l'emplacement de la colonne de plasma générée, produisant ainsi un guidage précis des foudres. Même si, l'idée est déjà présente, les expériences scientifiques n'en sont pas encore là.

3.2 Détection de la pollution atmosphérique [1].

La pollution atmosphérique est un problème important dans la société actuelle, et qui reste difficile à quantifier. Des méthodes optiques telle que la technique Lidar (Light Detection and Ranging) ou Doas (Differential optical absorption Spectroscopy) permettent cette détection. En particulier le Lidar [?], [?] consiste à envoyer une impulsion laser dans l'atmosphère, et à détecter le signal rétro-diffusé par diffusion Rayleigh (sur les gaz) et Mie (sur les aérosols), en fonction du temps, d'une manière analogue à un Radar (Radiation Detection and Ranging) optique. On accède ainsi à une mesure de la concentration d'un polluant en fonction de la distance. Toutefois, cette technique reste limitée pour de nombreuses raisons :

- tout d'abord, le Lidar n'utilise qu'une longueur d'onde, voire deux pour le DIAL (Differential Absorption Lidar) [?], ce qui ne permet la détection que d'un seul polluant à la fois;
- de plus, de nombreux polluants ont une bande d'absorption dans l'infrarouge (IR) moyen ou lointain, or, la rétrodiffusion Rayleigh ($\propto \lambda^{-4}$) est très peu efficace dans ce domaine spectral ce qui limite grandement la portée des Lidars infra-rouge classiques ;
- les lasers pulsés accordables, avec des énergies importantes, sont difficiles à produire pour des longueurs d'onde dans l'IR moyen et lointain ;
- les bandes d'absorption des polluants peuvent également se recouvrir, rendant ainsi difficile leur distinction ;
- le signal décroît avec le carré de la distance à cause de l'angle solide de détection.

L'utilisation des effets non linéaires engendrés par la propagation dans l'air d'une impulsion ultra-courte et ultra-intense pour la détection de polluants est une approche tout à fait novatrice. Cette propagation dans l'air devient hautement non linéaire, lorsque sa puissance crête dépasse une dizaine de gigawatts. Ainsi, sur le trajet d'un faisceau d'impulsions femtosecondes intenses, l'auto-focalisation due à l'effet Kerr et l'effet du plasma créé par l'impulsion conduisent à la création de filaments de lumière d'un diamètre d'environ $100 \mu\text{m}$ qui se propagent sur plusieurs dizaines de mètres dans l'air. Ces filaments fournissent de longues distances d'interaction aux processus non linéaires de conversion de fréquence, notamment à l'automodulation de phase. La génération de continuum, s'étendant de l'ultra violet jusqu'à l'infra rouge moyen (*i.e.* $4 \mu\text{m}$), est ainsi particulièrement efficace dans ces filaments.

L'objectif du projet Teramobile consiste en l'utilisation d'impulsions ultra-intenses créant des filaments de lumière blanche pour la caractérisation de l'atmosphère, et notamment pour la détection des polluants. Celui-ci se présente sous la forme unique d'un laser térawatt et d'une détection lidar, dans un système mobile, et donc déplaçable sur le terrain. Les caractéristiques du continuum généré doivent permettre d'apporter des solutions aux limites des Lidar actuels :

1. le très large spectre émis par les filaments peut être mis à profit pour une analyse de

- plusieurs gaz simultanément (analyse multi-polluants);
2. l'efficacité dans l'IR moyen pourrait être accrue par la génération de radiation "sur place" et la rétro-émission intensifiée par les effets non linéaires;
 3. la rétro-émission d'un spectre large devrait permettre un accès nouveau à la mesure de la distribution de taille des aérosols.

Ce projet combine l'ensemble de ces avantages à la résolution spatiale obtenue via la résolution temporelle du signal rétro-diffusé du Lidar classique.

Lors de mon stage, j'ai participé à une expérience en laboratoire, complétant le projet Teramobile. Cette expérience a mis en évidence un phénomène très important : la confirmation que le supercontinuum est réémis préférentiellement vers l'arrière par les filaments. La lumière détecté vers l'arrière est ainsi plus importante que dans le cas du Lidar classique.

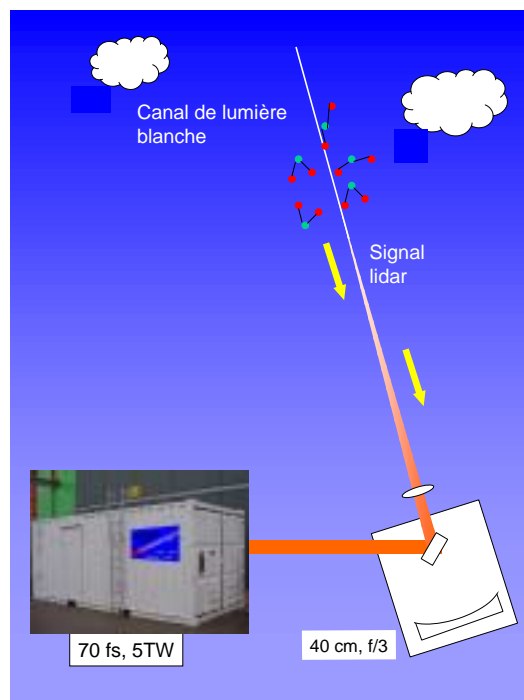


FIG. 3.3 – *Principe du Lidar non linéaire.*

La figure 3.3, nous montre le principe du Lidar non linéaire, qui consiste à envoyer un faisceau ultra-intense et ultra-court dans l'atmosphère, pour générer de la lumière blanche grâce à l'auto modulation de phase et avoir une rétro-émission qui soit plus importante grâce au filament. La lumière blanche émise vers l'avant va subir les rétro-émission classique de Rayleigh et de Mie, alors que la rétro-émission dû au filament envoie directement le large spectre de lumière blanche. Avant que le signal ne soit collecté par le télescope, la lumière subira des absorptions dont elle gardera la trace. La faisabilité du projet Teramobile a été prouvée à travers des premières expériences sur une espèce abondante, l'oxygène. Son spectre autour de 762 nm est représenté sur la figure 3.4 et a été obtenu à partir d'un signal Lidar intégré entre

300 m et 1800 m.

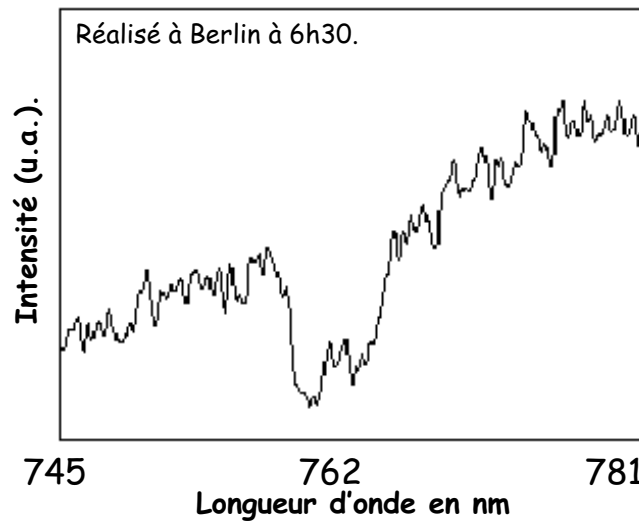


FIG. 3.4 – Spectre montrant la bande d'absorption de O_2 vers 762 nm, obtenu à partir d'un signal Lidar intégré entre 300 m et 1800 m. Le bruit de fond a été soustrait et le signal a été lissé.

3.3 Principe de l'ablation laser en régime femtoseconde.

Le principe du dépôt de couches minces par ablation laser (Pulsed Laser Deposition) est relativement simple. Un faisceau laser impulsionnel (le plus souvent nanoseconde) est focalisé sur une cible massive, placée dans une enceinte ultra-vide. Dans certaines conditions d'interaction, une quantité de matière est éjectée de la cible, et peut être collectée sur un substrat placé en vis à vis. La nature et la qualité du dépôt dépendent de nombreux paramètres (énergie du laser, nature et pression du gaz résiduel dans l'enceinte, température du substrat,...). Dans tous les cas, il est nécessaire de contrôler le transport des espèces de la cible jusqu'au substrat.

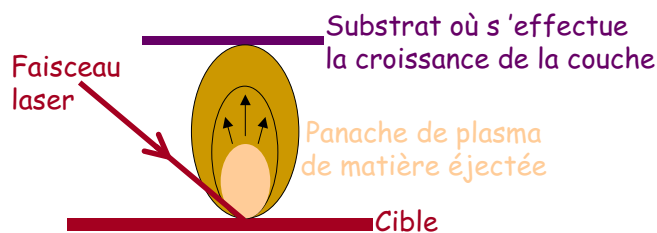


FIG. 3.5 – Schéma de principe de l'ablation laser et de la collecte par un substrat de la matière éjectée.

La possibilité de réaliser par ablation laser nanoseconde des couches minces possédant des propriétés particulières (supraconducteurs à hautes températures critiques, ferroélectriques, carbone amorphe) a déjà été largement démontrée.

Dans le cas du carbone amorphe (Diamond Like Carbon ou taC), la présence d'espèces très énergétiques dans le panache d'ablation favorise la croissance de couches du carbone, conduisant ainsi à des couches minces dont les propriétés se rapprochent de celles du diamant. Ces conditions correspondent à une forte densité d'énergie du laser sur la cible.

Dans le cas de l'ablation laser femtoseconde, des densités de puissance très supérieures peuvent être obtenues. Le panache plasma est alors constitué en partie d'espèces de forte énergie cinétique (de l'ordre du keV), et principalement d'espèces d'énergie cinétique de l'ordre de 100 eV. Dans ces conditions d'interaction, la présence de particules de taille micronique, qui nuisent à la qualité de surface du dépôt, est par ailleurs fortement diminuée.

3.4 Dynamique photochimique ultra-rapide.

L'activité de certain groupe se porte sur la dynamique photochimique ultra-rapide et sur les aspects fondamentaux des processus de transfert d'électrons aux interfaces et dans des systèmes supra-moléculaires. L'objectif principal des efforts est une meilleure compréhension des mécanismes et de la dynamique des processus de transfert de charge induits par la lumière aux interfaces solide/solide, solide/liquide et liquide/liquide. L'établissement du lien entre la structure moléculaire de l'interface et la cinétique des réactions photo-rédox superficielles est plus particulièrement recherché. Une grande variété de systèmes sont étudiés: des émulsions photographiques aux pigments pour l'impression textile, des protéines ferritines de notre sang aux électrodes semiconductrices photosensibilisées utilisées dans des cellules solaires photovoltaïques. Chacun des systèmes étudiés constitue le coeur d'une application technique ou bio-médicale, dans laquelle la séparation de charges induite par la lumière à une interface doit être optimisée.

L'identification des intermédiaires réactifs et la détermination des paramètres cinétiques des réactions induites par la lumière sont opérées par application des techniques de photolyse par impulsions laser fs, ps et ns, en conjonction avec l'utilisation de méthodes de spectroscopie optique et photo-thermique rapides. La résolution temporelle des équipements laser à disposition permet l'exploration de domaines de temps s'étendant en pratique de 10 fs à 1 s. Toutes les longueurs d'onde des domaines optiques UV, visible et IR, soit de $l = 300$ nm à $l = 10$ μ m, sont accessibles, et sont utilisées, soit pour le pompage optique d'états excités, soit dans des faisceaux de sonde. Nous allons en particulier nous pencher sur deux sujets.

3.4.1 Mouvement moléculaire cohérent des chaînes de polymère.

La spectroscopie à l'échelle femtoseconde permet l'étude d'états intermédiaires de réactions chimiques, en déterminant les espèces présentes au cours de la réaction. Ce domaine baptisé femtochimie par Ahmed Zewail (prix nobel de chimie en 1999), a permis de mettre en évidence les trajectoires des atomes dans l'espace des phases lors de la photofragmentation de molécules simples ($ICN \rightarrow I + CN$ ou encore $NaI \rightarrow Na^+ + I^-$).

D'autres processus plus complexes ont été étudiés grâce à cette méthode. Par exemple depuis 1993 à Strasbourg une étude sur le mouvement moléculaire cohérent de chaînes de polydiacétylène a montré l'existence d'un changement de configuration du polymère dans l'état excité.

Le principe repose sur la superposition d'états cohérents vibrationnels excités à l'aide d'une première impulsion laser de durée 9 fs. Le deuxième paquet d'onde qui est en situation hors

équilibre sur la surface de potentiel excité, entreprend un mouvement oscillatoire en explorant l'espace des configurations. Dans le cas le réaliste d'un potentiel anharmonique le paquet d'onde se dissipe. Cette dissipation, nous informe sur les mécanismes conduisant à la perte de cohérence du mouvement moléculaires. L'étude sur le polydiacétylène p-DCH, montre l'existence d'oscillation de période 23 fs, correspondant à la liaison $C = C$, et, d'un amortissement très rapide (~ 150 fs), montrant une relaxation très efficace de l'état excité, compatible avec **un changement de configuration des chaînes**.

3.4.2 Dynamiques des électrons des nanoparticules métalliques.

L'étude de la dynamique électronique dans les matériaux à elle aussi profité des techniques de la spectroscopie femtoseconde. Considérer que les électrons sont des quasi-particules ayant les bonnes propriétés des fermions ne suffit pas lorsqu'il est nécessaire de prendre en compte les propriétés de corrélation électroniques. Ces dernières se rencontrent dans les objets de dimensions réduites (typiquement une boîte de 1 nm de côté) devient important. Ou encore, lorsque l'on considère l'écrantage coulombien a la surface d'un métal, écrantage qui peut se manifester sur l'énergie des états de Rydberg localisés en surface.

L'optique impulsionnelle apporte la possibilité d'observer la dynamique des électrons dans une gamme de temps où le processus d'interactions se mettent en place. Les ordres de grandeurs d'énergie du quantum de plasmon dans un métal (excitation collective des électrons), du phonons acoustiques ou du couplage spin orbite sont respectivement de l'ordre de l'eV, du meV et dans la gamme de 0,1 eV. Chacune de ces énergies a une équivalence temporelle ($\Delta E \Delta t \sim \hbar$), variant entre la femtoseconde et quelques dizaines de picoseconde. Nous citons ici une expérience concernant l'étude de la dynamique des électrons dans des nano-particules de métaux nobles (sphères de cuivres ou d'argent de diamètre compris entre 3 et 15 nm). Ils faut tout d'abord noter deux choses :

- les métaux nobles sont intéressants en optique car ils permettent d'étudier les états d'occupations électroniques autour du niveau de Fermi;
- de plus, dans le cas des nano-particules une résonance de plasmon de surface associé à une modification du champ électrique à l'interface métal/diélectrique permet d'étudier les propriétés des excitations collectives électroniques.

Ils a donc été montré que la relaxation des électrons est différentes suivant que l'on considère les excitations individuelles (quasi-particules au sens de Landau) ou excitations collectives. Cela se manifeste par le ralentissement du processus d'échange d'énergie entre les électrons et le réseau lorsque l'on sonde le réseau. Ce phénomène a été attribué à la modification de l'écrantage dynamique, dû à la polarisation de la surface des sphères métalliques, entre les électrons dans les sphères de petites tailles (≤ 5 nm).

3.5 Découpe au LASER femtoseconde.

Dans le monde de la machine outil, l'arrivée du laser a constitué une petite révolution. Avec un laser, l'usinage se fait sans contact mécanique, ce qui permet à la fois rapidité et précision. Le développement des techniques laser dans l'industrie du bois à toutefois été freiné par le fait qu'un faisceau laser brûle le bois dans des conditions standard d'utilisation. Le laser a été pourtant mis en oeuvre dans des domaines précis où la brûlure d'usinage n'est pas limitante. Citons la fabrication de gabarit curviligne pour des coques de bateaux ou les

emportées pièces pour cartonniers. Dans certains cas, cette brûlure est au contraire à la base du procédé comme par exemple dans le cas de la gravure.

Le bois est un matériau biologique très hétérogène et intrinsèquement fibreux. L'orientation des fibres du bois est un paramètre essentiel. Typiquement le diamètre d'une fibre correspond à la taille d'un faisceau laser focalisé. Par ailleurs, le bois est connu pour être un très bon isolant thermique, pratiquement dix fois plus que le béton. Cette propriété est un facteur limitant si l'on considère l'interaction laser-matériau. En effet la densité de puissance crête apportée par un faisceau laser peut être considérable (de l'ordre de 10^{13} W/cm² pour un faisceau focalisé). Cette puissance est bien sûr utilisée pour pulvériser la matière (phénomène d'ablation laser) mais pendant la durée de ce phénomène d'ablation, un processus de diffusion thermique évacue une partie de l'énergie dans le matériau. Comme la conductivité thermique du bois est faible, cette énergie s'accumule dans un faible volume ce qui conduit à la carbonisation de la zone affectée thermiquement. Ceci reste vérifié pour des sources laser continues ou impulsionnelles dont la durée de l'impulsion s'étendant de la milliseconde (10^{-3} s) jusqu'à la nanoseconde (10^{-9} s).

La puissance disponible dans un faisceau laser composé d'impulsions femtoseconde est capable d'usiner par ablation n'importe quel type de matériaux, même ceux qui restaient inaccessibles aux techniques laser. Dans le cas du bois, les conséquences du caractère peu thermique de l'interaction sont spectaculaires. Alors que l'on a mentionné que la plupart des lasers brûlaient les échantillons de bois traités, l'usinage femtoseconde du bois ne laisse aucune trace, y compris sur les essences les plus claires comme l'érable sycomore.

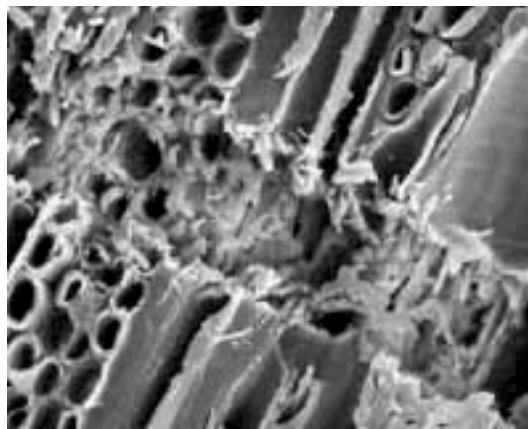


FIG. 3.6 – Photos montrant la percée d'un faisceau lasers femtosecondes dans un morceau d'érable.

La photographie 3.6 démontrent tout à fait les propriétés spécifiques de l'interaction laser-matière dans le cas du bois. La brièveté de l'interaction laser/bois court-circuite les phénomènes de diffusion thermique à l'origine des effets de carbonisation obtenus avec des lasers conventionnels. Ainsi dans le cadre des industries du bois, la propriété des impulsions ultra-courtes qui est de ne pas brûler l'échantillon usiné, est extrêmement intéressante.

Le taux de perte dans le débit en panneaux de particules est actuellement de 16.8 % avec les techniques de découpe mécanique. Par une meilleur optimisation du débit, l'utilisation du laser permettrait de réaliser des gains de matière si, bien sûr, les chants ne sont pas brûlés. Un autre intérêt est une diminution des rebuts par l'absence d'éclats. Toutefois, il est nécessaire

d'avoir une capacité de découpe d'épaisseurs variées et une cadence élevée pour s'adapter à l'industrie du bois. Les essais préliminaires réalisés montrent à l'évidence que le laser à impulsion ultra-courte ne peut faire face aujourd'hui à de telles applications du fait de sa capacité trop faible en épaisseur, liée à la puissance moyenne encore modérée des sources (1-2 W).

En revanche, cette technologie peut s'adresser aujourd'hui à des métiers spécifiques qui ont pour contraintes principales la finesse du travail et/ou une qualité irréprochable de l'état de surface des chants, comme l'industrie du jouet, la marqueterie, les modèles réduits, la lutherie et dans le cas de découpes curvilignes. La question qui se pose alors est la capacité d'investissement des entreprises présentes dans ces secteurs, qui sont souvent des PME, face au prix et à l'entretien d'un tel système femtoseconde.

Conclusion

La recherche combinée du milieu industriel et scientifique a permis un développement rapide de ces lasers femtosecondes. De nos jours, ses applications sont diverses et variées, allant de l'écologie à la médecine en passant par la femtochimie jusqu'au développement d'une protection contre la foudre. Sans relâche de nouvelles idées d'applications apparaissent et demande toujours plus de performance à ces systèmes laser. Mais, son principe reste complexe, et sa mobilité est encore délicate même si elle est déjà faisable. Un gros effort est encore à faire pour la miniaturisation d'un tel système qui ne va pas sans un gain en stabilité de la chaîne tout entière.

Cette étude que j'ai effectuée sur les lasers femtosecondes, regroupe des travaux de réglage nécessaire au fonctionnement quotidien d'un tel système, et, une recherche plus théorique sur les divers principes rencontrés. Ce rapport est la base d'un certain nombre de connaissances apprises pendant ce stage, qui reste à compléter lors de ma thèse.

Bibliographie

- [1] www.teramobile.org. *Utilisation d'impulsion femtoseconde pour la caractérisation de l'atmosphère et le déclenchement de la foudre*.
- [2] Arthur L. Schawlow and Charles H. Townes. Infrared and optical maser. *Physical Review*, 1958.
- [3] Didier Mondelain. *Lidar linéaire et non linéaire dans l'infrarouge moyen*. PhD thesis, Université Claude Bernard-Lyon1, 2001.
- [4] C.Rullière. *Femtoseconde Laser Pulses*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1998.
- [5] Catherine Le Blanc. *Principes et réalisation d'une source laser terawatt femtoseconde basée sur le Saphir dopé au Titane. Caractérisation des impulsions produites et démonstration du régime d'intensité au niveau de 10^{18} W/cm²*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 1998.
- [6] Nathalie Blanchot. *Génération d'impulsions femtosecondes dans le domaine des 100 TW par amplification dans des mélanges de verres, et démonstration de focalisation à des densités de puissance supérieures à $2 \cdot 10^{19}$ W/cm²*. PhD thesis, Université de Paris XI ORSAY, 1995.