OPTIQUE NON-LINÉAIRE FEMTOSECONDE

F. SALIN, P. GEORGES, G. ROGER, G. LE SAUX, P. GRANGIER et
A. BRUN

*Institut d'Optique Théorique et Appliquée, Centre Universitaire
d'Orsay, Bat. 503, BP. 147, F-91403 Orsay Cedex, France*

RESUME

Cet article présente le principe de fonctionnement et la réalisation pratique d'un laser femtoseconde ainsi que quelques applications. Après avoir rappelé la théorie du blocage en phase des modes d'une cavité laser, nous présentons l'influence des effets non-linéaires sur les impulsions produites. Nous discutons la similitude entre les phénomènes observés et la propagation des solitons optiques. Nous présentons enfin quelques expériences de spectroscopie femtoseconde.

ABSTRACT

This paper deals with the principle and practical realization of femtosecond lasers and with some of their applications. We present the theory of passive mode-locking and then analyze the influence of non-linear effects. We discuss the similarities observed between the laser behaviors and optical solitons. Finally we present some examples of femtosecond spectroscopy.

I - INTRODUCTION

L'invention du laser a bouleversé depuis vingt cinq années de nombreux secteurs de la recherche et de l'industrie et un développement rapide des sources permettant d'obtenir des impulsions lumineuses temporellement de plus en plus brèves a vu le jour. En 1981, des impulsions plus brèves que 100 femtosecondes (10^{-13} s) ont été observées [1] ; en 1987 les Laboratoires Bell ont produit des impulsions de 6 femtosecondes [2]. Pour fixer les idées de ces échelles de temps nous dirons que si en une seconde la lumière peut faire environ sept fois le tour de la terre, en 50 femtosecondes elle ne parcourt qu'une distance égale à 15 μm , inférieure à l'épaisseur d'un cheveu. La génération d'impulsions aussi brèves a entraîné l'évolution de la recherche dans de nouveaux domaines de la physique, de la chimie et de la biologie. Il est maintenant possible d'étudier les cinétiques des processus qui étaient jusqu'alors inaccessibles telles que, par exemple, la relaxation des distributions électroniques dans les semiconducteurs ou les relaxations vibrationnelles de molécules dans des réactions chimiques ou biologiques. Un nouveau champ d'investigation appelé étude des "phénomènes ultrarapides" a ainsi été ouvert [3].

II - PRINCIPE DE LA GENERATION DES IMPULSIONS :

Il existe plusieurs méthodes pour obtenir des impulsions ultra-brèves. Nous nous limiterons ici au blocage de mode passif qui est la façon la plus simple et la plus courante d'opérer. La plupart des lasers femtosecondes existant dans le monde ont une structure en anneau que l'on appelle cavité. La figure 1 représente son organisation bâtie autour de deux sous-cavités. La première contient un jet de colorant organique (Rhodamine 6G), la seconde, un jet d'absorbant saturable (DODCI : diethyloxadicarbocyanine iodide). Un laser à Argon continu focalisé sur le jet de colorant permet d'exciter les molécules de la Rhodamine qui, en se désexcitant, émettent de la lumière collectée par les deux miroirs de la sous-cavité. Deux faisceaux lumineux se propagent ainsi en sens inverse dans l'anneau. En l'absence de la seconde sous cavité, des ondes électromagnétiques de fréquences différentes, appelées les "modes de résonance de la cavité", pourraient se propager avec des amplitudes et des phases variant aléatoirement. La lumière ainsi produite aurait toutes les caractéristiques d'un bruit. La DODCI est un colorant qui est normalement très absorbant lorsqu'il est faiblement éclairé : ses molécules absorbent la lumière incidente sur le jet. Son absorption peut se saturer sous l'influence d'une intensité lumineuse suffisante, toutes ses molécules sont excitées, et l'énergie lumineuse peut alors traverser le colorant qui est devenu transparent (ce comportement est celui d'un absorbant saturable). Ce composé organique joue donc le rôle d'un interrupteur de lumière commandé par la puissance lumineuse existant dans l'anneau.

Figure 1 : Cavité de l'oscillateur laser en anneau.

Parmi les très nombreux modes de la cavité, seuls les modes en phase, dont les amplitudes s'ajoutent au même instant, pourront traverser la DODCI car, sous l'action de leur rayonnement coopératif, celle-ci deviendra transparente. Les autres modes s'opposent partiellement entre eux et peuvent même parfois se détruire. L'intensité résultante est trop faible pour saturer l'absorbant et ces modes sont absorbés. On appelle cette sélection entre les modes : *le verrouillage ou blocage passif des modes* d'une cavité laser.

Supposons donc que l'énergie lumineuse soit suffisante dans la cavité pour qu'un pic de bruit rende transparent l'absorbant saturable. Deux impulsions contre-propageantes vont alors circuler dans la cavité à partir de la DODCI. La traversée successive du milieu amplificateur et de l'absorbant saturable conduit à une dynamique de raccourcissement des impulsions après chaque tour de cavité. En effet, comme on peut le voir sur la figure 2, lorsqu'une impulsion pénètre dans l'absorbant saturable, son front avant est très fortement absorbé pour saturer l'absorption, tandis que sa crête et son front arrière sont transmis par la DODCI rendue transparente. Quand l'impulsion traverse le milieu amplificateur, le gain se sature et l'amplification du front arrière est plus faible que celle du front avant et de la crête. Après un grand nombre de tours de cavité on observe un raccourcissement de l'impulsion, par l'avant dû à l'absorbant saturable et par l'arrière dû à la saturation du gain. Naturellement ce mécanisme ne se répète pas à l'infini et plusieurs effets vont limiter la durée des impulsions.

Figure 2 : Illustration du mécanisme de rétrécissement des impulsions par saturation des pertes et du gain dans une cavité laser dont les modes sont bloqués passivement. La courbe pointillée est une réplique de la forme de l'impulsion pénétrant dans l'absorbant saturable.

Le premier est dû aux bandes passantes limitées des éléments constitutifs du laser (par exemple la bande passante de la Rhodamine, des miroirs ou des éléments sélectifs éventuellement utilisés). Il tend à réduire l'étendue spectrale $\Delta\nu$ des impulsions et donc à augmenter leur largeur temporelle Δt ($\Delta\nu \cdot \Delta t = \text{Cte}$ équivalent au principe d'incertitude de Heisenberg). Pour limiter l'influence de ce phénomène, on utilise des miroirs présentant des courbes de réflectivité très large ($R > 99.7\%$ pour $\Delta\lambda = 100 \text{ nm}$ autour de 620 nm). La durée ultime des impulsions est liée à la bande spectrale du milieu à gain. C'est pourquoi on utilise des colorants laser dont la courbe de gain s'étend sur plus de 30 nm . Le second effet limitant la durée des impulsions est dû à la *dispersion de vitesse de groupe* introduite par la variation avec la longueur d'onde de l'indice de réfraction des matériaux traversés (jets de colorant, traitements des miroirs diélectriques...). L'indice n'étant pas le même pour les différentes longueurs d'onde composant le spectre de l'impulsion, ces dernières ne voyagent pas à la même vitesse dans la cavité. Elles se déphasent donc progressivement. Ce phénomène n'affecte pas la bande passante mais modifie les phases relatives des différentes composantes spectrales contenues dans l'impulsion. Ceci tend à élargir l'enveloppe temporelle de l'impulsion et crée une modulation de fréquence dans son profil temporel (Figure 3). Dans le domaine visible et proche infrarouge, l'indice augmente avec la fréquence. L'impulsion présente donc un front avant plus rouge que le front arrière (dispersion positive ou normale).

Figure 3 : Dispersion de vitesse de groupe positive, les fréquences élevées sont dans le front arrière de l'impulsion.

On peut comprendre qu'un état d'équilibre entre les effets de ces deux mécanismes et le processus de rétrécissement évoqué plus haut peut être obtenu, mais que finalement c'est la dispersion qui sera responsable de la durée limite des impulsions produites.

Il faut cependant signaler que des effets non linéaires supplémentaires peuvent intervenir. Les très fortes densités de puissance ($P > 10^{10} \text{ W/cm}^2$) obtenues au point de focalisation sur l'absorbant saturable peuvent provoquer d'importants effets non linéaires. En particulier, l'indice de réfraction n du solvant de l'absorbant saturable peut être modifié par effet Kerr optique ($n = n_0 + n_2 I$ où n_2 est l'indice non linéaire du matériau et I la densité de puissance lumineuse). Ce phénomène conduit à une modulation de phase temporelle. Il ne modifie pas la forme temporelle de l'impulsion mais provoque un glissement du front avant de l'impulsion vers le rouge et du front arrière vers le bleu. L'automodulation de phase élargit donc le spectre de l'impulsion mais ne raccourcit pas pour autant l'impulsion puisque les nouvelles fréquences créées ne sont pas en phase. Ces effets non linéaires (dispersion de vitesse de groupe et automodulation de phase) sont d'autant plus importants que la durée des impulsions est courte. Lorsque le laser produit des impulsions de durée inférieure à 100 fs ce sont des phénomènes non linéaires qui gouvernent la formation des impulsions. Deux cas sont possibles : si la dispersion de vitesse de groupe et l'automodulation de phase sont de même signe, leurs effets s'additionnent et conduisent à un élargissement de l'impulsion ; par contre, s'ils sont de signes opposés, ils se compensent et permettent d'obtenir des impulsions plus courtes car la dispersion de vitesse de groupe permet de remettre en phase les différentes fréquences créées par l'automodulation de phase. Il convient donc de s'interroger sur le signe de ces effets dans notre cavité. L'automodulation de phase a plusieurs origines physiques [4]. La première est liée aux variations de l'indice de réfraction du solvant des colorants avec l'intensité lumineuse qui le traverse. Le coefficient n_2 du solvant étant positif

on obtient une modulation de phase dite "positive". Par ailleurs, toute variation d'une bande d'absorption ou de gain va se traduire par une variation de l'indice du milieu. La saturation de l'absorption de la DODCI par l'impulsion lumineuse, introduit donc une modulation de phase qui est, dans notre cas, négative. Cet effet n'est pas négligeable mais apparaît comme petit par rapport à ceux dus au solvant. La modulation de phase globale de la cavité est par conséquent positive. Afin d'obtenir des impulsions très courtes, il convient donc que la dispersion de la cavité soit négative (ou anormale). Les éléments constituant la cavité présentant par nature une dispersion positive [5], il faut introduire artificiellement une dispersion négative. Un tel système peut être réalisé en utilisant quatre prismes [6] selon le montage de la figure 4. On voit sur cette figure qu'à cause de la réfraction, les chemins optiques ne sont pas les mêmes pour des paquets d'ondes bleus (chemin B) et rouges (chemin R). On peut montrer que le signe et l'amplitude de la dispersion de vitesse de groupe introduite par ce système peuvent être ajustés par la simple translation d'un des quatre prismes [6]. Lorsque l'on règle le système afin de compenser la modulation de phase due à l'effet Kerr dans le solvant, on obtient des impulsions très courtes ($\tau < 40$ fs) dont la puissance crête est de l'ordre de 1 kW. Le spectre du laser présente une largeur d'environ 10 nm autour de 620 nm. Cette longueur d'onde d'émission n'est liée qu'au seul choix du couple de colorants. Dans une cavité similaire à celle décrite ici, nous avons obtenu des impulsions de durée inférieures à 100 fs à 685 nm, 775 nm et 800 nm [7-8]. Le taux de répétition des impulsions est fixé par la longueur té et vaut dans notre laser 82 MHz.

Figure 4 : Système de quatre prismes présentant une dispersion de vitesse de groupe négative.

III - CONTROLE DES IMPULSIONS FEMTOSECONDES

Les détecteurs de lumière et l'électronique conventionnelle ont un temps de résolution limité à quelques picosecondes, et ne peuvent pas résoudre dans le temps un signal d'une durée de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes. Il a donc fallu développer des systèmes de mesure indirects que ne permettent pas d'obtenir simplement le profil temporel de l'impulsion mais qui fournissent une estimation de

sa durée. Ces techniques font appel à l'optique non linéaire et la méthode la plus utilisée consiste à mettre en oeuvre un *autocorrélateur optique* dont le principe est basé sur la génération du second harmonique dans un cristal non linéaire [9].

Le schéma de principe de l'autocorrélateur est représenté sur la figure 5. L'impulsion lumineuse est divisée en deux par une lame séparatrice. Un des deux faisceaux suit un trajet fixe. Le second faisceau est retardé temporellement par son passage dans un coin de cube monté sur un vibreur dont le déplacement est commandé par un générateur sinusoïdal de basse fréquence, typiquement 30 Hz. Si l'on appelle $I(t)$ le profil temporel en intensité de l'impulsion parcourant le bras fixe, celui de l'impulsion ayant parcouru le bras mobile sera notée $I(t - \tau)$, où τ est le retard défini par le décalage du coin de cube mobile.

Figure 5 : Schéma de principe de l'autocorrélateur optique.

Les deux faisceaux sont ensuite focalisés sur un cristal non linéaire de KDP (KH_2PO_4), qui engendre un signal à la fréquence double dans l'U.V., proportionnel au produit des intensités des deux impulsions : $I(t) \cdot I(t - \tau)$.

Il n'y aura production d'U.V. (310 nm) que si les deux impulsions arrivent de façon synchrone sur le KDP. L'intensité du signal U.V. dépendra du retard τ introduit par le coin de cube mobile se déplaçant lentement. Le flux U.V. mesuré à l'aide d'un photomultiplicateur dont le temps de réponse est très lent par rapport à la largeur de l'impulsion, permet d'obtenir un signal électrique qui est donc l'intégrale de ce qu'il reçoit au cours du temps :

$$G_2(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t) \cdot I(t - \tau) dt.$$

Les variations de $G_2(\tau)$ avec le retard τ donnent la *fonction d'autocorrélation* du profil, temporel de l'impulsion. La figure 6 présente la fonction d'autocorrélation d'une impulsion dont la durée à mi-hauteur est estimée à 31 fs.

Figure 6 : Fonction d'autocorrélation d'une impulsion dont la durée est estimée à 31 fs.

IV - PHENOMENES NON LINEAIRES DANS LES LASERS FEMTOSECONDES

Au paragraphe II nous avons présenté de façon succincte le fonctionnement d'un laser à colorant à blocage de mode passif. Nous allons maintenant rentrer dans les détails et exposer l'analogie qui existe entre le fonctionnement de ces lasers et les effets "soliton".

Nous avons vu dans ce qui précède que l'obtention d'impulsions très courtes est liée à la compensation des modulations de phase introduites par l'effet Kerr et par la dispersion. Cette notion de compensation se retrouve dans la théorie des solitons optiques. En effet la propagation d'une onde d'amplitude $u(z,t)$ dans un milieu non linéaire et dispersif est décrite par une équation non linéaire de Schrödinger :

$$i \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + |u|^2 u = 0 \quad (1)$$

où z est la distance de propagation dans le milieu et t le temps dans le repère propre à l'impulsion.

Zhakarov et Shabat [10] ont montré qu'il existait des solutions stables de cette équation. Ces solutions nommées solitons ont des propriétés particulières. On peut tout d'abord classer les solitons en familles caractérisées par l'énergie du soliton. Ainsi le soliton le plus classique, appelé soliton fondamental ou soliton d'ordre 1, correspond à une impulsion dont le profil temporel reste parfaitement constant lors de la propagation. On peut montrer [10] que l'amplitude de cette impulsion est donnée par :

$$u(z,t) = \frac{\exp(i z/2)}{\text{ch}(t)}.$$

Si on prend cette impulsion et que l'on augmente son amplitude d'un facteur N on obtient un soliton d'ordre N . Ces solitons présen-

tent une évolution périodique de leur forme temporelle et spectrale. La figure 7 montre l'évolution théorique sur une période soliton de telles impulsions pour $N = 1, 2$ et 3 . En réalité, il existe une infinité de solitons d'ordre N donné. En particulier on peut obtenir des impulsions stables par propagation dont le profil temporel n'est pas symétrique [11]. La figure 8 donne un exemple de l'évolution du profil temporel et du spectre d'un soliton d'ordre 2 non symétrique sur une période soliton.

Figure 7 : Evolution théorique de solitons d'ordre 1, 2 et 3 sur une période soliton.

Figure 8 : Evolution théorique d'un soliton d'ordre 2 non symétrique : profil temporel (8.a) et spectral (8.b).

Revenons à notre laser. Nous avons vu qu'en ajustant la séquence de quatre prismes disposée dans la cavité on pouvait régler la dispersion de vitesse de groupe de cette cavité. On s'aperçoit alors que lorsque la dispersion est globalement négative on obtient des impul-

sions longues, dont la durée diminue lorsque la dispersion se rapproche de zéro. Si la dispersion devient positive le fonctionnement du laser change brutalement [12]. La fonction d'autocorrélation des impulsions présentent trois bosses, tandis que l'enveloppe du train d'impulsions est modulée très régulièrement avec une période correspondant à environ 2000 tours de cavité. Afin de comprendre la cause de cette évolution périodique nous avons enregistré les fonctions d'autocorrélation d'impulsions sélectionnées en différents points de la période. La figure 9 montre ces fonctions au début, au premier quart et au milieu de la période. On observe une évolution de la forme de l'impulsion qui ressemble fortement à celle d'un soliton d'ordre 3 (c.f. fig. 7.c). (Rappelons qu'une fonction d'autocorrélation à 3 bosses (fig. 9.c) correspond à une impulsion à deux bosses égales). On peut donc penser que ce réglage particulier du laser rend instable les impulsions "classiques" et l'oblige à émettre des solitons d'ordre supérieur. En défocalisant le jet d'absorbant, on diminue les effets non-linéaires ce qui est équivalent à diminuer l'amplitude des impulsions. On obtient alors des solitons d'ordre 2. Nous avons tenté d'obtenir l'évolution de la fonction d'autocorrélation de ces solitons d'ordre 2 au cours de leur période mais nous n'avons observé qu'une faible variation de la forme de ces fonctions. Nous avons alors enregistré l'évolution du spectre de ces impulsions au cours de la période. La figure 10 montre les résultats expérimentaux. On observe une évolution complexe et périodique du spectre qui est proche de celle obtenue théoriquement pour le soliton d'ordre 2 non-symétrique présenté sur la fig. 8.

Figure 9 : Fonctions d'autocorrélations expérimentales enregistrées au début (9.a), au premier quart (9.b) et au milieu (9.c) de la période de modulation de l'enveloppe du train d'impulsions.

Figure 10 : Enregistrement expérimental de l'évolution du spectre d'un soliton d'ordre 2 non-symétrique au cours de la période soliton.

On peut donc conclure qu'un laser femtoseconde à colorant est une source de solitons optiques : solitons fondamentaux ($N=1$) dans le régime habituel, soliton d'ordre élevé ($N > 1$) pour un réglage particulier.

On est évidemment en droit de s'interroger sur la validité de l'équation non linéaire de Schrödinger pour un milieu aussi complexe qu'un laser. En effet, cette équation ne considère que des milieux transparents sans perte. Or, un laser est par essence un milieu présentant des pertes et du gain, qui de plus sont, dans notre cas, dispersives (dépendant de la longueur d'onde) et saturables (dépendant de l'intensité lumineuse). Le relativement bon accord obtenu entre les prédictions de l'équation non-linéaire de Schrödinger et les résultats expérimentaux est donc tout à fait surprenant. Nous pensons en fait que les phénomènes de saturation des colorants ne jouent un rôle important que pendant la phase transitoire d'établissement des impulsions dans le laser. En régime permanent le gain et l'absorption étant quasiment saturés pendant la durée de l'impulsion ils ne présenteraient que peu de variations qui introduiraient des effets non linéaires.

Néanmoins, il est évident qu'une description complète du fonctionnement d'un laser femtoseconde devrait tenir compte des deux facettes du problème :

- le blocage de mode passif par saturation du gain et de l'absorption.
- la stabilisation et le raccourcissement des impulsions par effets non linéaires.

Une telle modélisation est relativement complexe [13] et nécessite une parfaite connaissance des paramètres du laser. Sur un plan plus pratique on peut dire que, même si tous les effets mis en jeu ne

sont pas compris, on sait que les phénomènes solitons ont tendance à stabiliser le laser lorsqu'il fonctionne dans son mode normal (soliton fondamental = impulsion stable) et qu'il est par conséquent très important de parfaitement contrôler la dispersion de vitesse de groupe et l'automodulation de phase d'une cavité laser femtoseconde.

V - SPECTROSCOPIE FEMTOSECONDE

Après avoir présenté quelques phénomènes non-linéaires présents dans la cavité laser, nous allons nous intéresser à l'utilisation des impulsions produites par le laser pour l'étude de matériaux. Afin d'obtenir des effets non-linéaires dans une plage de longueurs d'ondes aussi grande que possible, les impulsions issues de l'oscillateur sont amplifiées dans le système présenté sur la figure 11. Cet amplificateur est composé de quatre cuves de colorants pompées par un laser Nd:YAG doublé en fréquence. Les impulsions de pompe ont une énergie de 70 mJ à 532 nm et une durée d'environ 6 ns. A la sortie de la chaîne amplificatrice les impulsions femtosecondes se sont élargies par dispersion de vitesse de groupe dans les cuves. Après recompression à l'aide d'un système de quatre prismes, on obtient des impulsions de 80 fs de durée, 200 μ J d'énergie à la cadence du laser Nd:YAG c'est à dire 50 impulsions par seconde. La puissance crête de ces impulsions atteint 1 GW. Lorsqu'on focalise ces impulsions la densité de puissance au point de focalisation dépasse 10^{14} W/cm². Pour de telles intensités n'importe quel milieu devient non linéaire. En particulier, si on place une cuve d'eau au point de focalisation, on produit un "continuum spectral" : par des effets non-linéaires complexes et mal-connus l'énergie se trouve distribuée de façon continue sur une bande allant de 300 nm à 1,5 μ m [14]. On a ainsi créé une source femtoseconde blanche. En utilisant des filtres interférentiels, on peut sélectionner des bandes spectrales discrètes et ainsi effectuer des expériences à différentes longueurs d'onde.

Il existe une très grande diversité d'expériences qui ont été faites à l'aide d'impulsions femtosecondes. Pour le lecteur désirant des informations plus précises nous conseillons la lecture des proceedings des congrès "Ultrafast Phenomena" [3] qui ont lieu tous les deux ans. L'immense majorité de ces expériences utilise la méthode dite "pompe et sonde". Cette méthode consiste à exciter un matériau à l'aide d'une impulsion très intense et de sonder l'état du milieu avec une impulsion peu intense et présentant un certain retard sur l'impulsion pompe. En faisant varier progressivement ce retard on peut accéder à l'évolution du milieu après excitation avec une résolution qui est limitée par la durée des impulsions utilisées (typiquement 100 fs). On peut mieux comprendre le principe de la méthode en considérant une personne qui désirerait obtenir une suite de photos représentant l'évolution d'une bille lorsqu'on la lâche au bord d'une cuvette. Le temps nécessaire à l'observateur pour recharger son appareil photo étant grand devant le temps d'évolution de la bille, il ne pourra pas retrouver précisément sa trajectoire. Il lui faut donc utiliser une

méthode nécessitant plusieurs expériences successives. Au premier essai, il prend une photo de la bille au point de départ ; pour le deuxième essai, il reprend la bille au fond de la cuvette, la lâche du même endroit que précédemment mais attend un court instant Δt avant de prendre la photo ; au troisième essai, il fait de même mais attend un instant $2\Delta t$ et ainsi de suite. Après un nombre N grand d'expériences il obtient l'évolution complète de la bille avec une très bonne précision (donnée par la convolution du temps de réponse de l'appareil photo et du retard Δt). Il est évident que cette méthode n'est applicable qu'à des phénomènes parfaitement reproductibles et dont l'évolution ne dépend que de l'excitation initiale.

Figure 11 : Chaîne amplificatrice.

Comme exemple de spectroscopie femtoseconde nous allons présenter une étude de la cinétique de saturation d'absorption dans un absorbant saturable solide. L'étude de l'évolution de l'absorption d'un corps après excitation permet de suivre à la trace les populations excitées. En effet considérons un corps présentant un état fondamental E_1 et un état excité E_2 (Fig. 12). La transition $E_1 \rightarrow E_2$ correspond à une raie d'absorption qui est supposée très large. En effet, si on désire observer des phénomènes (transitions, thermalisation...) très rapides, le principe de Fourier (ou le principe d'incertitude) impose que la largeur de la raie spectrale soit au moins aussi large que l'inverse du temps de réponse. On peut à l'aide d'une impulsion intense de fréquence $h\nu_0$ peupler les niveaux supérieurs de E_2 . L'absorption du matériau étant inversement proportionnelle à la population dans les niveaux excités, un excès de population dans E_2 se traduit par un trou dans la bande d'absorption ("hole burning"). La population va ensuite relaxer vers le bas de la bande E_2 , entraînant un déplacement du trou d'absorption vers des fréquences plus basses. La figure 13 schématise l'évolution d'un spectre d'absorption du matériau, on peut donc savoir ce qu'il advient, et en combien de temps, des populations excitées.

Figure 12 : Schéma de principe de l'évolution d'une population excitée.

Figure 13 : Evolution du spectre d'absorption du corps de la figure 12

Nous avons effectué cette expérience dans un verre dopé par des microcristallites (RG 630 de chez Schott). Ce verre est transparent au delà de 650 nm et absorbant en dessous. Une population excitée est créée par absorption d'une impulsion à 620 nm. Cette population provoque le trou dans la bande d'absorption signalé par une flèche sur la figure 14. La relaxation de cette population excitée se traduit par une large bosse qui se déplace vers les grandes longueurs d'ondes. On voit nettement sur la figure 14 que les électrons mettent moins d'une picoseconde pour relaxer vers le bas de la bande. Ce type de milieu est un bon exemple de corps présentant une non-linéarité (dépendance de la transmission avec l'intensité lumineuse incidente) importante et rapide.

Figure 14 : Evolution de la transmission d'un verre RG 630 excité par une impulsion à 620 nm.

On peut bien entendu étudier de nombreux autres corps ou effets. Par exemple les chimistes s'intéressent aux changements de conformations (ou de forme dans l'espace) de grosses molécules. De tels changements peuvent être excessivement rapides. Deux conformations différentes d'une même molécule peuvent être distinguées par leurs spectres d'absorption qui ne sont en général pas identiques. Par exemple la molécule organique de vert de Malachite peut présenter deux formes différentes. Sous l'action d'une impulsion intense elle peut passer de l'une à l'autre. Une cuve de vert de Malachite en solution dans du méthanol est placée au point de croisement d'un faisceau pompe et d'un faisceau sonde. Ces deux faisceaux sont composés d'impulsions de 20 fs obtenues par compression puis amplification des impulsions issues de la chaîne amplificatrice décrite ci-dessus [15]. Des impulsions aussi courtes possèdent un spectre très large (> 25 nm à mi-hauteur) ce qui permet d'obtenir des informations avec une très bonne résolution temporelle sur une large bande spectrale. Inversement comme chaque longueur d'onde correspond à l'excitation d'un niveau, un spectre très large ne permet pas d'exciter sélectivement un niveau.

La figure 15 montre l'évolution de la transmission de l'échantillon avec le temps. On voit un front de montée très rapide suivi d'une lente relaxation correspondant au temps de recouvrement de l'absorption du vert de malachite. Par ailleurs, on voit apparaître environ 900 fs après l'arrivée de l'excitation ($t=0$) un deuxième trou dans la bande d'absorption autour de 640 nm. Ce phénomène correspond à la formation d'un photoisomère obtenu par rotation de certains constituants de cette molécule complexe. L'utilisation d'impulsions femtosecondes permet donc de "voir" se transformer une molécule. On obtient une

sorte de film de l'évolution d'un matériau durant les toutes premières picosecondes.

Figure 15 : Spectre de transmission relative ($T(t) - T(t = 0)$) de la molécule de vert de malachite en solution dans du méthanol. L'échelle verticale de la bande 610-640 nm a été multipliée par 1000.

On pourrait présenter de nombreux autres exemples de spectroscopie femtoseconde. De très nombreux groupes travaillent en particulier sur les semi-conducteurs et les structures à puits quantiques. Les dernières présentent des non-linéarités géantes qui pourraient être appliquées au traitement optique du signal.

En conclusion, nous pensons que, huit ans seulement après l'apparition des premières impulsions femtosecondes [1], les mécanismes fondamentaux régissant la formation des impulsions très courtes sont à peu près compris et que le nombre d'applications de ce type de lasers va croître très rapidement. Les performances vont s'améliorer (on parle déjà de puissances de l'ordre du Pétawatt (10^{15} W)) ouvrant de nouveaux domaines de la physique : lasers à rayons X, accélération de particules par faisceau laser... De plus, la technologie des lasers devenant plus fiable et plus simple, des physiciens non-spécialistes des lasers vont pouvoir se lancer dans la spectroscopie résolue dans le temps à l'échelle femtoseconde et faire grandement évoluer notre connaissance des phénomènes ultra-rapides.

REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier C. Froehly, A. Barthélémy et F. Reynaud pour les nombreuses discussions que nous avons eu au sujet des phénomènes solitons. Nous remercions ainsi toute l'équipe du Laboratoire d'Optique Appliquée et plus particulièrement J.P. Chambaret pour les très nombreux conseils techniques qu'il nous a donné. Une partie de ces travaux ont été effectués sous contrat DRET n° 85-1411.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Fork R.L., Greene B.I. et Shank C.V.
Appl. Phys. Lett., 38, 671 (1981).
- [2] Fork R.L., Brito-Cruz C.H., Becker P.C. et Shank C.V.
Opt. Lett. 12, 483 (1987).
- [3] (voir par exemple Ultrafast Phenomena VI
T. Yajima, K. Yoshihara, C.B. Harris, S. Shionoya
eds (Springer-Verlag, Berlin 1988).
- [4] Miranda S.R., Jacobovitz G.R., Brito-Cruz C.H. et Scarparo A.F.
Opt. Lett., 11, 224 (1986).
- [5] De Silvestri, Laporta P. et Svelto O.
IEEE, J. Quantum Electron. QE-20, 533, (1984).
- [6] Fork R.L., Martinez O.E. et Gordon J.P.
Opt. Lett. 9, 150, (1984).
- [7] Georges P., Salin F., Le Saux G., Roger G. et Brun A.
Opt. Comm., 69, 281, (1989).
- [8] Georges P., Salin F. et Brun A.
à paraître dans Opt. Lett.
- [9] "Ultrashort laser pulses", Kaiser W. eds
(Springer Verlag Berlin), (1988).
- [10] Zakharov V.E. et Shabat A.B.
Zh. Eksp. Teor. Fiz., 61, 118 (1972)
(Sov. Phys. JETP, 34, 62 (1971)).
- [11] Salin F., Grangier P., Roger G. et Brun A.
Phys. Rev. Lett., 60, 569, (1988).
- [12] Salin F., Grangier P., Roger G. et Brun A.
Phys. Rev. Lett., 56, 1132, (1986).
- [13] Avramopoulos H., French P.M.W., Williams J.A.R., New G.H.C. et
Taylor J.R.
IEEE J. Quantum Electron. QE-24, 1884 (1988).
- [14] Le Saux G., Salin F., Georges P., Roger G. et Brun A.
Appl. Optics, 27, 777, 1988
- [15] Georges P., Salin F., Le Saux G., Roger G. et Brun A.
Opt. Comm., 67, 297, 1988