

# Introduction

---

## 1 – L'optique et les temps ultracourts

Les physiciens et physico-chimistes intéressés à l'étude de la réponse de la matière dans des temps de plus en plus courts ont été, dans les années 70 – 80, les instigateurs d'une révolution technologique, puis scientifique, dont l'ampleur ne s'est révélée que ces dernières années. De 1980 à 1985, poussés par le souci de la performance extrême, les physiciens des lasers avaient atteint les limites physiques de l'optique en réalisant des impulsions de lumière visible dont la durée n'excédait pas quelques cycles optiques. Ils parvenaient déjà à des intensités <sup>1</sup> suffisantes pour démontrer les potentialités de ce nouvel outil, mais les techniques d'amplification, du fait de leur complexité, en limitaient le développement et la diffusion. Puis, entre 1985 et 1990, les opticiens transposaient au rayonnement <sup>1</sup> visible la méthode de l'amplification par impulsion à dérive de fréquence, utilisée jusqu'alors dans les radars. Sans allonger sa durée ni perturber sa cohérence, l'impulsion optique gagnait un facteur mille à dix mille en énergie par rapport aux méthodes traditionnelles. Enfin, en 1990, une dernière évolution allait permettre la constitution d'une large communauté autour de la science des temps ultracourts avec l'apparition des lasers femtosecondes solides qui ont, à la fois, simplifié et fiabilisé les systèmes et autorisé leur prise en charge par les industriels.

L'engouement pour ces nouvelles sources de rayonnement repose sur la conjonction de deux caractéristiques qui étaient considérées comme incompatibles auparavant : l'extrême brièveté et le fort contenu

---

1. Dans ce rapport, intensité et éclairement désigneront indifféremment la densité de flux d'énergie d'un rayonnement.

énergétique. **La brièveté des impulsions donne accès à la mesure directe des mouvements électroniques, atomiques et moléculaires et l'intensité autorise la manipulation de la matière sur les mêmes échelles de temps. L'expérimentateur peut mettre le système physique en condition au niveau microscopique, puis observer et guider son évolution.** Ces atouts ont ouvert de nouvelles perspectives d'applications bien au-delà de la physique. Ils ont permis l'émergence d'une communauté d'utilisateurs, issus de disciplines très différentes, mais liés par l'outil commun, les techniques de mesure, l'interprétation des résultats.

Si les sources d'impulsions femtoseconde ont ouvert de nouvelles voies d'exploration à la physique atomique et moléculaire, à la chimie, à la physique du solide, à la biologie, en permettant l'analyse de phénomènes cohérents ultrabrefs, elles n'ont pas encore amené d'évolutions conceptuelles assez spectaculaires, ni entraîné de bouleversements assez importants pour justifier, à elles seules, une attention exceptionnelle par rapport à de nombreux autres domaines de la science. C'est bien la maîtrise du très intense et de l'ultra-intense qui, par l'ampleur des progrès, le caractère inattendu des résultats, les promesses des applications, a apporté aux sources femtoseconde une autre dimension et des perspectives fascinantes. **La puissance crête des lasers a été multipliée par un million en un peu plus de dix ans**, projetant ces outils de la chimie dans la physique nucléaire, les plasmas relativistes, l'astrophysique, et, peut-être bientôt, dans la physique des hautes énergies. Les intensités obtenues après focalisation permettent d'accélérer un électron à plusieurs centaines de mégaélectronvolts dans des installations modestes et compactes. Le gigaélectronvolt sera dépassé dans les installations les plus puissantes. Les lasers de très haute énergie génèrent des faisceaux d'électrons relativistes, de plusieurs centaines de millions d'ampères, dans une section ne dépassant pas quelques centaines de microns-carré. Par interaction avec divers matériaux, ces électrons produisent des positrons et des flux importants de rayonnements gamma qui ont permis d'observer de nombreuses réactions nucléaires photo-induites. Des sources intenses de neutrons rapides sont en cours d'élaboration. Les densités d'énergie extrêmes ont été utilisées pour mettre, très transitoirement, la matière stellaire sur la pailasse des laboratoires. Le domaine spectral des rayonnements cohérents a pu être étendu aux photons UV lointain, et X, ce qui présente un intérêt certain pour la visualisation des échelles nanométriques et le sondage des milieux denses ; mais, de plus, ce progrès n'interdit plus d'envisager la transposition des techniques de compression d'impulsion à ces longueurs d'onde, ce qui pourrait ouvrir un nouveau champ d'investigations encore plus surprenant. Dans des secteurs moins spectaculaires mais plus proches des applications, les sources

de rayons X, le micro-usinage, la chirurgie de l'œil devraient rapidement profiter des possibilités extraordinaires de ces sources.

L'ensemble des activités liées à la physique aux temps courts, recherches à ultra-haute intensité comme recherches fondées sur la brièveté des impulsions, doit faire l'objet d'un examen approfondi. C'est en effet un champ disciplinaire d'une potentialité exceptionnelle, montrant des taux de progression rarement atteints (facteur un million en 10 ans, ce qui est mieux que la loi de Moore). Un tel gisement conceptuel et technologique apporte des outils si révolutionnaires à tant de domaines qu'il mérite une attention et un soutien particulier avec l'assurance d'un retour sur investissement gigantesque.

Le rapport s'attachera d'abord à décrire l'état actuel de cette communauté, de ses besoins technologiques, métrologiques et de son implantation industrielle. Puis, en s'appuyant sur les résultats acquis, il passera en revue les principales perspectives de progrès qu'on est en droit d'en attendre dans le domaine de la connaissance scientifique. Il montrera que les applications techniques, bien qu'elles restent aujourd'hui potentielles, concernent des domaines-clefs du développement économique et social. Le rythme accéléré des découvertes et leur caractère totalement inattendu laissent penser que leur inventaire est encore très incomplet et que les conditions physiques nouvelles ainsi créées ouvrent un champ d'exploration dont on ne discerne pas encore les limites. Notons enfin que ce rapport ne concerne que les activités scientifiques ou techniques n'ayant aucun lien avec la défense.

En physique, les premières recherches ont porté sur la matière condensée, puis sur les atomes, les molécules, les agrégats, les plasmas. Pour apprécier l'étendue de l'impact de ces sources ultrabrèves, il suffit de remarquer que les phénomènes élémentaires concernés mettent en jeu des énergies caractéristiques dont les valeurs s'étendent du milliélectronvolt au mégaélectronvolt. Le fait, aussi, que **le premier Prix Nobel lié à ce thème soit un prix de chimie, attribué à A. Zewail en 1999, démontre le succès d'une méthode dont l'utilité dépasse les limites strictes d'une discipline** et qui a conduit à l'émergence d'une nouvelle science, la femtochimie. De même, une autre interface de la physique, la femtobiologie, est née de l'adaptation de ces sources ultrabrèves à la matière biologique pour « filmer » les modifications conformationnelles de macromolécules et pour identifier leur dynamique fonctionnelle *in situ* grâce, par exemple, à leur association avec la microscopie non-linéaire sur molécule unique.

Les applications, pour la plupart, n'ont pas encore atteint le stade de l'industrialisation. Des perspectives précises sont déjà en vue dans le traitement et l'usinage des matériaux, la détection des polluants atmosphériques, l'ophtalmologie, et bientôt les sources de rayons X. À plus

long terme, la fusion thermonucléaire contrôlée, les diagnostics médicaux, les télécommunications optiques à très haut débit, la synthèse de molécules sont également des champs d'application prometteurs. Les défis techniques à relever portent sur l'accessibilité et la compacité des installations, la fréquence de répétition des impulsions laser, la robustesse des optiques, la fabrication industrielle des sources.

## 2 – Les sources laser et les grands instruments

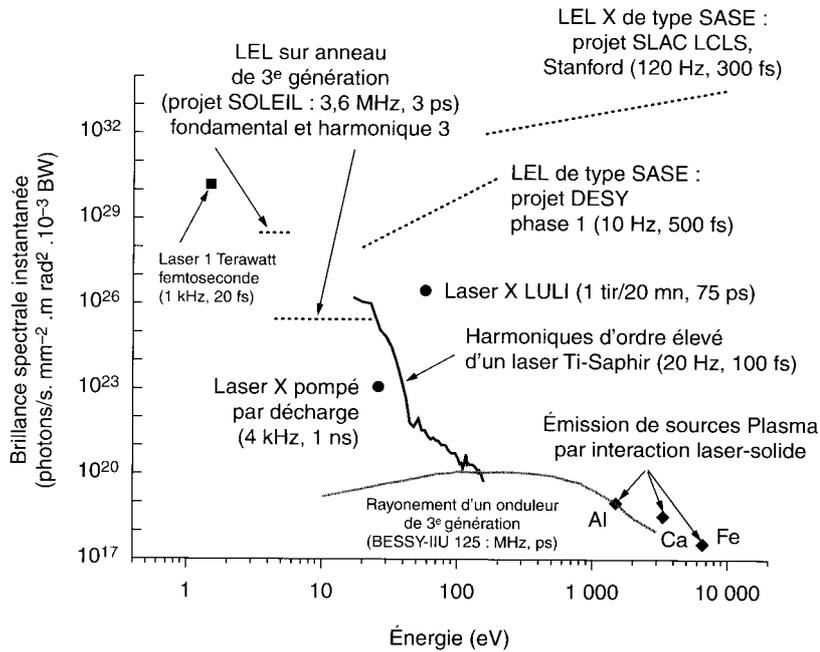
Les lasers ultrabrefs n'ont, à première vue, rien de commun avec un grand instrument, en particulier ni l'encombrement, ni le coût. Le rapprochement apparaît cependant nécessaire sous différents aspects. D'abord, il arrive que ces sources fonctionnent, en partie, comme de grands instruments. Ensuite, comme générateurs de rayonnement, elles peuvent compléter certains grands ou très grands instruments. Enfin, installées auprès de synchrotrons ou d'autres accélérateurs de particules, ces sources sont utilisées dans les expériences et apporteront, peut-être, des solutions au problème du gigantisme de ces installations.

Deux installations, en France, bénéficient du programme européen « Access to Large Scientific Infrastructures ». L'une, au Laboratoire pour L'Utilisation des Lasers Intenses (LULI), dispose d'un laser à très haute puissance crête et à très faible taux de répétition, qui est destiné à l'étude fondamentale des milieux denses très fortement ionisés et des plasmas ainsi qu'à la production de rayons X et aux nouvelles méthodes d'accélération de particules chargées. L'autre, au Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA), s'appuie sur une gamme de lasers de puissance moyenne, à haut taux de répétition, dédiés à une grande variété de sujet. Les deux laboratoires ont leurs programmes propres, mais fournissent également du temps de faisceau à des équipes françaises et européennes qui trouvent, dans ces équipements et dans une demi-douzaine d'autres installations européennes, un réseau couvrant leurs exigences très diverses en matière de puissance, de durée d'impulsion, de longueurs d'onde, de taux de répétition. D'autres centres serveurs existent en France et offrent des performances complémentaires du LULI et du LOA. Ce sont principalement le Centre des Lasers Intenses et Applications (CELIA) à Bordeaux avec des puissances laser moyennes à très haute cadence de répétition, et le Département de Recherche sur l'État Condensé, les Atomes et les Molécules (DRECAM) du CEA-

Saclay, spécialisé dans l'accordabilité des sources depuis l'infrarouge jusqu'à l'ultraviolet X. Tous deux postulent aussi à un soutien européen.

Les lasers ultrabrefs ne sont pas les seules sources de rayonnement intense utilisées par les physiciens, les chimistes et les biologistes. Les synchrotrons et les lasers à électrons libres les ont précédés et ces grands ou très grands instruments font partie depuis longtemps de l'équipement de base de tous les pays scientifiquement développés. Toutefois, si on convient de se limiter au domaine des impulsions ultracourtes évoquées plus haut (c'est-à-dire de durées inférieures à la picoseconde), seuls les lasers à électrons libres entrent réellement en concurrence. Aujourd'hui, ils s'affirment par la souplesse et la fiabilité de leur fonctionnement, mais ils restent essentiellement confinés au domaine infrarouge et infrarouge lointain avec des puissances crêtes très inférieures à celles des sources laser. Les plus récents abordent les domaines UV et XUV au prix de difficultés considérables qui devraient être résolues grâce aux sources de rayonnement synchrotron de troisième génération ou encore avec les futurs lasers à électrons libres fonctionnant en émission spontanée amplifiée. Si les lasers classiques ultrabrefs ne peuvent aller très loin dans ces domaines de longueur d'onde, ils permettent de générer, dans le domaine XUV, des harmoniques intenses, d'ordre très élevé, en focalisant leur rayonnement dans un gaz. Des impulsions ultrabrèves ont ainsi été obtenues à des longueurs d'onde situées dans la fenêtre de transparence de l'eau. Si on parvient à en augmenter l'intensité, **l'observation dynamique d'organismes biologiques *in vivo*** deviendra possible à partir de véritables images en rayons X. En remplaçant le gaz par un solide qui se transforme en un plasma dense, on obtient des impulsions X cohérentes ou incohérentes intenses. **Par leur faible coût et leur versatilité, ces sources seront un complément indispensable aux accélérateurs et aux autres sources lasers (voir figures 1 et 2).**

En raison de leur faible encombrement, des sources laser peuvent être facilement installées auprès de grands instruments comme les synchrotrons ou les lasers à électrons libres. En synchronisant les différentes sources, plusieurs domaines spectraux peuvent ainsi être associés dans une expérience, et la source ultrabrève apporte une résolution temporelle impossible à atteindre autrement. Le rayonnement de la source laser ultrabrève peut être plus directement couplé à l'accélérateur, par exemple en faisant interagir le faisceau d'électrons avec le rayonnement du laser, ce qui génère une impulsion de rayons X ou gamma, elle-même utilisée pour étudier la dynamique ultrarapide d'un réseau cristallin. Enfin, les lasers ultrabrefs et ultra-intenses ouvrent la voie au développement de nouvelles méthodes d'accélération de particules, par interaction avec un plasma. Encore au stade exploratoire, les expériences ont montré que des champs de 100 GeV/m pouvaient être



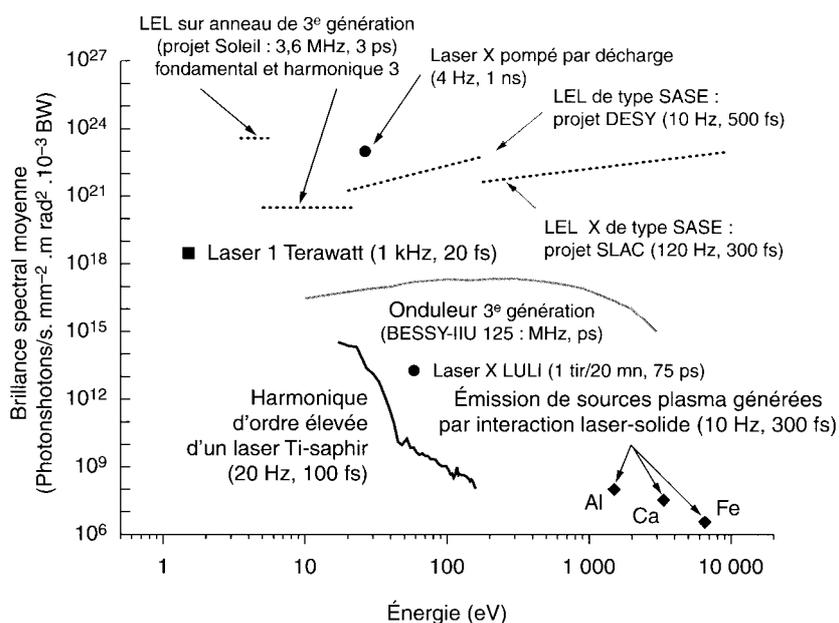
**Fig. 1** – Brillance spectrale instantanée des principales sources impulsives intenses. Les courbes en pointillé indiquent les performances attendues pour des projets de lasers à électrons libres sur anneau de rayonnement synchrotron de troisième et quatrième génération. Parmi les sources existantes, les lasers X et la génération d'harmonique d'ordre élevé permettent actuellement d'atteindre les brillances instantanées les plus importantes dans le domaine spectral XUV.

atteints. Les techniques de guidage d'impulsion, en allongeant la longueur d'interaction, doivent parvenir à accélérer des électrons au delà du gigaélectronvolt sur de très courtes distances.

Quelquefois ressenties comme concurrentes des grands instruments pour la génération de rayonnements, les sources laser ultrabrèves et ultra-intenses sont en train de leur ouvrir de nouveaux champs d'expérimentation et apporteront peut-être un jour de nouveaux outils pour reprendre la course à l'énergie.

### 3 – La manipulation et l'observation aux temps ultracourts

Les sources laser subpicosecondes allient la brièveté à la forte puissance, assurant ainsi la résolution temporelle et l'excitation de phénomènes non-linéaires. Les échelles de temps nettement inférieures à la



**Fig. 2** – Brillance spectrale moyenne de différentes sources impulsives intenses. Les courbes en pointillé indiquent les performances attendues pour des projets de lasers à électrons libres sur anneau de rayonnement synchrotron de troisième et quatrième génération. Parmi les sources à impulsions courtes (picosecondes ou subpicosecondes) existantes, les onduleurs de troisième génération permettent actuellement d'atteindre les brillances spectrales moyennes les plus élevées dans le domaine spectral XUV.

picoseconde donnent accès à la dynamique des atomes de Rydberg, à la dynamique réactionnelle, aux temps de vie des états excités dans les phases denses. Elles permettent également de manipuler la matière et de l'observer en un temps assez court pour que les mécanismes de relaxation n'aient pu encore se manifester. C'est ainsi qu'ont été mis en évidence les milieux ionisés à la densité du solide, les impulsions X suprathermiques, les phénomènes athermiques dans les matériaux.

Les vibrations intramoléculaires étaient un champ d'étude exemplaire pour faire la démonstration des possibilités offertes par ces sources, mais c'est la dynamique réactionnelle qui allait apporter les résultats les plus spectaculaires et les plus prometteurs puisqu'ils ouvraient la porte à la compréhension et à l'identification des étapes successives d'une réaction chimique, au niveau moléculaire. Ainsi, l'objectif de la femtochimie est de parvenir à une description unifiée de la réactivité chimique en prenant en compte les aspects géométriques, les évolutions des distributions électroniques et l'influence du milieu réactionnel en phase

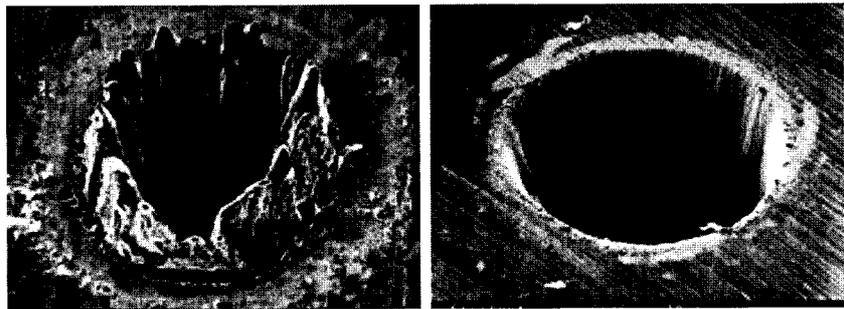
dense. La plupart des résultats sont obtenus en phase gazeuse, mais la femtochimie en phase liquide est également vigoureuse et a apporté des éclairages décisifs sur la solvatation, les mécanismes de transfert de charge, la dynamique des liaisons hydrogènes, le rôle des solvants. La forte intensité a joué ici un rôle important en favorisant l'emploi de techniques d'optique non-linéaires. Les femtochimistes attendent avec impatience que l'attochimie permette d'observer directement la déformation des nuages électroniques au cours des réactions, en utilisant des impulsions de durée 100 à 1 000 fois plus brèves qui pourraient être fabriquées à partir des rayonnements XUV cohérents.

Si la femtochimie poursuit les mêmes objectifs que la dynamique réactionnelle avec des méthodes plus puissantes et en cherchant à expliquer les mécanismes globaux au niveau microscopique, **le contrôle cohérent est encore plus ambitieux. Issu de la théorie**, il ne se contente pas de déposer l'énergie en un point précis de la molécule, il veut profiter de la cohérence du laser pour piloter partiellement la réaction en créant une interférence entre des chemins quantiques ou des paquets d'ondes vibrationnels conduisant à des états différents. En utilisant des impulsions préformées, on peut même, pour des systèmes complexes, utiliser la répétitivité du laser pour itérer un processus d'optimisation basé sur des algorithmes génétiques, afin d'aboutir au produit de réaction recherché sans avoir à analyser le détail de l'interaction. Les premiers résultats expérimentaux ont validé l'approche. Ils ouvrent la perspective de pouvoir contrôler ou créer des réactions chimiques.

En physique de la matière condensée, les mesures des temps de vie d'états excités ultrabrefs sont encore d'actualité pour les systèmes inhomogènes artificiels comme les puits quantiques ou les composites. Le contrôle cohérent y est difficile mais il a été appliqué avec succès à l'injection de courant dans des semi-conducteurs. Quant aux phénomènes athermiques, ils sont provoqués par les perturbations intenses induites dans le matériau sur **un temps si court que les notions habituelles de transport thermique et de température ne s'appliquent pas**. Ils intéressent de plus en plus diverses applications. Encore mal compris, ils créent des modifications irréversibles d'un type nouveau qui permettent par exemple des découpes parfaites à l'échelle submicroscopique (*voir figures 3, 4 et 5*), des transformations qui ne suivent pas les diagrammes de phase habituels. La diffraction d'impulsions X ultrabèves fournit alors un diagnostic approprié qui permet de suivre en temps réel l'évolution et la destruction de l'ordre cristallin. L'ensemble de ces méthodes aide également à comprendre les mécanismes de formation de défauts dans les isolants par irradiation.

Les physiciens des plasmas chauds ont, eux aussi, vite saisi l'intérêt de ne plus être tributaires de la conductivité thermique, qui est le principal obstacle à l'étude cet état de la matière en laboratoire. De plus, les

temps d'ionisation et de chauffage deviennent assez courts pour que l'expansion hydrodynamique soit négligeable. La densité du plasma est donc celle du milieu avant ionisation. Des plasmas fortement corrélés, à la densité du solide, peuvent ainsi être étudiés dans des conditions exceptionnellement bien définies. En outre, ce sont de puissantes sources de rayons X durs. Leurs propriétés sont d'un intérêt certain pour l'astrophysique. Ces études contribuent également à l'acquisition de données utiles à certains programmes de simulation liés à la défense.



**Fig. 3** – Micro-usinage laser : Trou de 100 micromètres de diamètre percé dans de l'acier par un laser à impulsion longue (nanoseconde) à gauche et par un laser femtoseconde à droite.



**Fig. 4** – Micro-marquage par laser femtoseconde pour la lutte contre la contrefaçon.

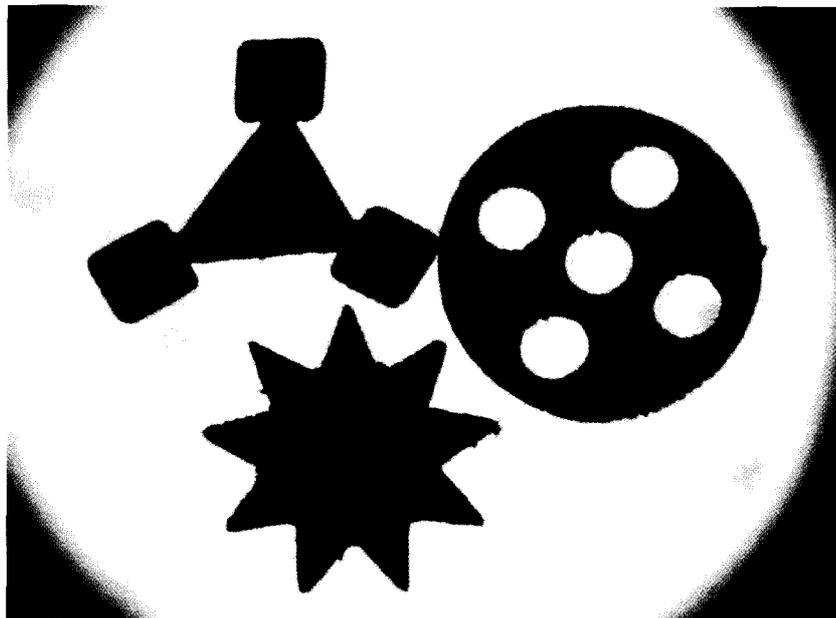


Fig. 5 – Micro-usinage de pièces en laiton (le diamètre de chaque pièce est de 800 micromètres)

## 4 – Les champs forts

Les sources laser ultracourtes et ultra-intenses atteignent facilement les régimes de champs forts où le champ électrique associé au rayonnement devient supérieur au champ intra-atomique qui lie les électrons périphériques au noyau. Des effets spectaculaires se manifestent alors, comme l'explosion coulombienne de molécules ou d'agrégats, qui résulte du déséquilibre électrique créé dans la cible par l'éjection d'électrons de valence accélérés par le champ laser. Dans le cas d'agrégats nanométriques, l'édifice atomique explose en composants multichargés dont l'énergie peut atteindre le mégaélectronvolt. L'émission simultanée de rayons X durs (jusqu'à 5 kiloélectronvolts) a été une grande surprise, aujourd'hui bien comprise en introduisant la notion de nanoplasma, c'est-à-dire de plasmas éphémères de dimensions nanométriques. **Le pont avec la physique nucléaire a été définitivement établi** avec la découverte récente d'une importante émission neutronique lors de l'irradiation d'agrégats de deutérium par des sources d'énergie plutôt modestes. Les perspectives de développement devraient donner accès à des flux crête exceptionnellement élevés, conduisant à de nouvelles

expériences de physique nucléaire combinant neutrons et photons synchrones, et cela à l'aide d'un petit équipement.

Les intensités du rayonnement laser, atteintes après focalisation, même avec des sources modestes, correspondent à des champs électriques assez forts pour provoquer l'autofocalisation et la filamentation du faisceau dans un gaz, pouvant conduire à son ionisation et générant des canaux de lumière blanche. Ces canaux servent de source pour effectuer des études spectroscopiques à très grande distance du laser afin de détecter, par exemple, la pollution atmosphérique. Pour des puissances plus élevées, non seulement le gaz s'ionise, mais les électrons atteignent des énergies pouvant largement dépasser le mégaélectronvolt. Dans ce plasma relativiste, le faisceau laser peut être autofocalisé, filamenté, absorbé, diffusé suivant des lois complètement nouvelles. L'extrême brièveté de ces phénomènes complexes est particulièrement bien adaptée aux performances des ordinateurs actuels qui ne permettent une simulation détaillée que sur des durées inférieures à la picoseconde. **Pour des impulsions ultrabèves, des confrontations très précises entre simulation directe et expériences ont ainsi pu être effectuées pour la première fois, validant la puissance de l'outil numérique comme instrument de recherche.** À la surface d'un solide, les valeurs extraordinaires des champs atteints après focalisation génèrent des flux importants de particules rapides conduisant à des expériences de physique nucléaire originales sur la fission induite, l'activation photo-induite ou la création de paires électron-positron. Sans pouvoir atteindre des champs assez élevés pour que la création de telles paires se produise dans le vide, les lasers ultra-intenses ouvrent de nouvelles voies à des tests de l'électrodynamique quantique relativiste dans des conditions extrêmes, à condition de les coupler à un accélérateur d'électrons. Enfin, il n'est pas exclu qu'il soit possible, un jour, de vérifier certains effets de la relativité générale qui sont susceptibles de se produire au voisinage des trous noirs.

## 5 – Les orientations technologiques

Aujourd'hui, si les oscillateurs femtosecondes se banalisent, les sources laser ultra-intenses restent des appareils de laboratoire, qui demandent la présence d'un spécialiste et des précautions d'emploi. Les matériaux actifs solides, comme le saphir dopé au titane, ont déjà apporté un progrès spectaculaire dans la fiabilité et les performances. On évalue à plus de 2000 le nombre de sources laser ultrabref titane : saphir dans le monde, dont plus de la moitié sont des sources commer-

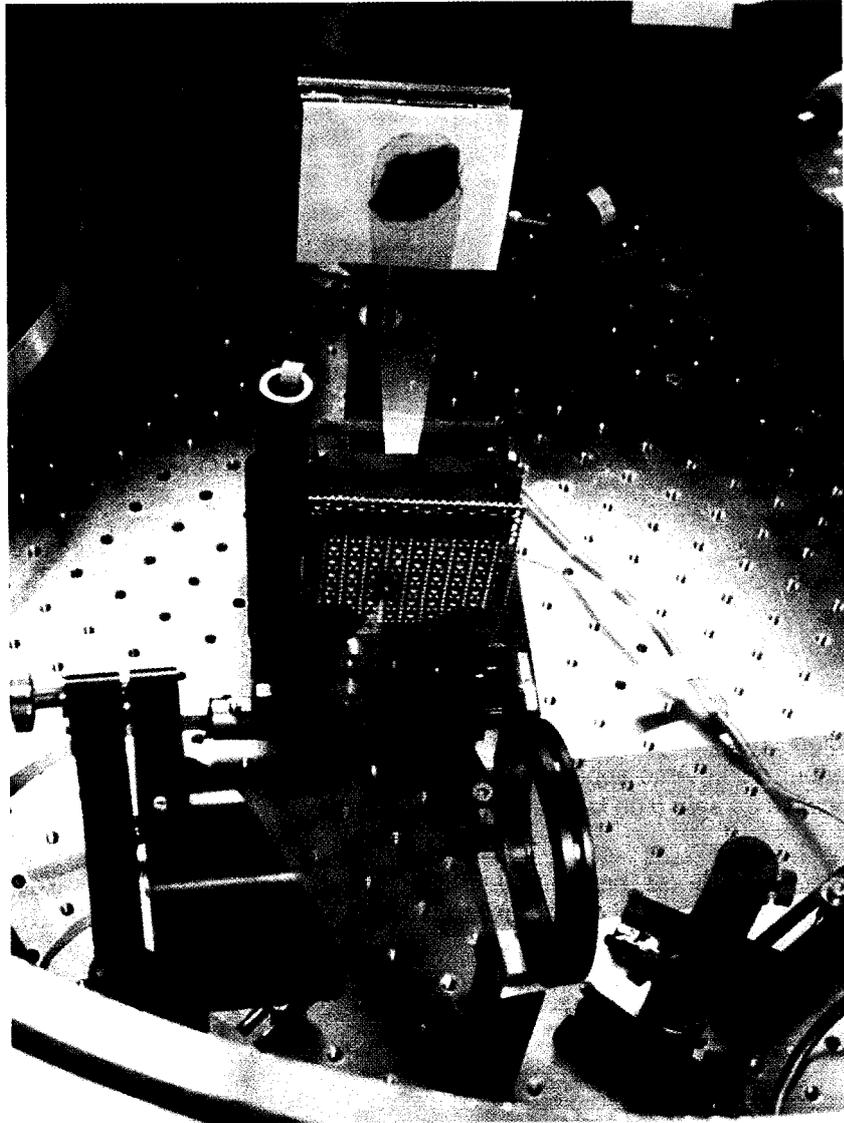
ciales. Le parc français est estimé entre 80 et 100 unités. La distribution de ces sources est une fonction rapidement décroissante de l'énergie par impulsion. Une énergie de quelques microjoules est suffisante pour beaucoup d'expériences, en particulier en spectroscopie, et la grande majorité des sources tombent dans cette catégorie. Elles autorisent en général des taux de répétition élevés, donnant des puissances moyennes convenables pour assurer une bonne sensibilité de détection.

En ce qui concerne les sources de très haute énergie, leurs applications sont limitées aux recherches fondamentales sur les plasmas, les sources de rayons X et de particules. Elles ont profité de la souplesse de la technique de l'amplification par impulsion à dérive de fréquence : la transformation de lasers nanosecondes en lasers ultra-intenses a pu ainsi s'effectuer à coût réduit en utilisant les éléments existants. Leur nombre ne dépassera pas quelques unités et leur fonctionnement est proche de celui d'un grand instrument.

Les progrès de la femtochimie, du contrôle cohérent, de la matière condensée, ne dépendent pas seulement de l'énergie, de la durée et de la cadence des impulsions mais également de l'accordabilité en longueur d'onde des sources. Déjà ces domaines utilisent toutes les fréquences disponibles et l'extension vers les XUV est attendue avec impatience. La phase et l'amplitude apparaissent de plus en plus comme des paramètres essentiels et la mise en forme totale des impulsions avec optimisation automatique est un défi pour le contrôle effectif des sources et pour les mesures. On dispose dès aujourd'hui de méthodes de mesure complètes de l'amplitude et de la phase spectrale. Il reste à les rendre facilement utilisables et à améliorer leurs performances.

## 6 – Organisation du rapport

À la suite de cette introduction, des recommandations et d'un préambule sur le laser, le rapport est structuré en trois parties : les sources laser, les domaines de recherches, et les domaines d'applications, suivies d'une réflexion sur l'enseignement dans ce domaine scientifique.



© Tec & Doc – La photocopie non autorisée est un délit

**Fig. 1-12** – Faisceau de protons produit par l'interaction d'un laser ultra-intense avec une cible d'aluminium de quelques microns d'épaisseur. Les ions sont accélérés du côté opposé de celui du laser.