

04

ATOMES ET MOLÉCULES OPTIQUE ET LASERS PLASMAS CHAUDS

BRUNO MACKÉ
Président de la section

JACQUES BAUDON
Rapporteur

Michèle Albrecht
Alain Aspect

Christian Bordas
Bernard Bourguignon

Marc Chatelet
Anne Debarre

Danielle Dowek
André Ducasse

Jean-Paul Dufour

Jacques Dupont-Roc
Alain Fort

Bertrand Girard
Guy Laval

Pierre Lompré
Arnold Migus

Jean-Paul Piqué

Jean-Paul Pocholle

Jean-Pierre Troalen
Michel Vedel

Ce rapport présente la conjoncture nationale et internationale dans les domaines relevant de la section 04 du Comité National. Il ne prétend pas à l'exhaustivité. Il existe en effet une activité importante, aussi bien théorique qu'expérimentale, qui se situe dans la continuité de domaines en général fondamentaux, par exemple en physique atomique et moléculaire et en physique des collisions, activité qui parfois est à la source de nouveaux thèmes de recherche. Ce n'est qu'à cet égard que cette activité figure dans ce rapport qui a été délibérément orienté vers les développements les plus récents.

INTRODUCTION

En dépit d'un intitulé pour le moins composite (Atomes et molécules, Optique et lasers, Plasmas chauds), le domaine relevant de la section 04 est d'une grande homogénéité. La lumière y joue un rôle central puisqu'elle intéresse les atomes et les molécules, par leurs états internes (spectroscopie) et par le mouvement de leur centre de masse (refroidissement d'atomes, optique et interférométrie atomiques et moléculaires), ainsi que les plasmas chauds pour lesquels elle est à la fois, sous forme d'impulsions brèves et intenses, un mode de production et un moyen de diagnostic. En outre, atomes, molécules et plasmas sont les constituants

de sources lumineuses très variées couvrant un spectre très étendu de fréquences, de l'infrarouge (IR) aux rayons X durs.

Un grand renouveau s'opère dans la discipline par le changement profond de la nature des objets étudiés. Cette évolution va d'abord vers une plus grande complexité : interaction avec les surfaces solides, agrégats, molécules au sein d'un solvant, etc. Dans ce domaine où théorie, modélisation et expérience se livrent une course fructueuse, de grands progrès sont à attendre. Les plasmas chauds constituent, eux aussi, un beau champ d'investigation de la complexité et les plasmas photo-induits y ajoutent, comme ingrédient supplémentaire, l'onde laser, capable d'induire de multiples instabilités. D'un autre côté, une évolution s'opère vers l'observation et la manipulation d'objets uniques ou de systèmes de très petite taille. Dans cette nouvelle "nano-physique", aussi bien les problèmes fondamentaux que les applications – existantes ou potentielles – sont d'un grand intérêt.

L'utilisation de forces radiatives pour contrôler le mouvement des atomes par laser permet de former et d'étudier des vapeurs diluées ultra-froides (jusqu'à quelques nano-Kelvins) dont les propriétés particulières sont fort utiles en optique et interférométrie atomiques. La réalisation récente de la condensation de Bose-Einstein est venue apporter une nouveauté considérable, dont on ne peut encore mesurer toutes les conséquences.

L'optique occupe dans ce rapport une place importante. Elle est certes, comme on l'a dit, étroitement reliée à tous les autres domaines, mais les progrès importants qui y ont vu le jour méritaient d'être traités à part. De nouveaux matériaux et de nouvelles sources sont apparus, permettant en particulier la production d'impulsions ultra-brèves. La maîtrise que l'on a aujourd'hui dans l'utilisation de ces impulsions permet l'étude de processus très rapides et ouvre la voie vers le contrôle quasi parfait de l'évolution de systèmes atomiques, moléculaires et réactifs. La production d'impulsions brèves ultra-intenses (de 10 Terawatts au Petawatt) permet, quant à elle, d'étudier la matière dans des conditions très inhabituelles et elle a, comme sous-produit, la réalisation de sources VUV et X. De telles sources sont d'un grand intérêt en physique ato-

mique et moléculaire et en dynamique structurale. Les phénomènes de propagation non linéaire et les phénomènes dynamiques qui les accompagnent posent eux aussi des problèmes nouveaux et intéressants pour de futures applications. Le développement de sources nouvelles et celui du refroidissement et du piégeage ont eu des retombées dans le domaine de la métrologie des fréquences, depuis les micro-ondes jusqu'au visible.

Enfin, la spectroscopie moléculaire connaît des progrès récents considérables qui se situent aux interfaces avec d'autres domaines comme l'astrophysique, la chimie (celle des flammes par exemple), la physicochimie des plasmas et l'étude des atmosphères. La possibilité qu'elle offre de détecter et de caractériser des espèces très peu abondantes ou très réactives, dans des milieux variés et souvent difficiles, voire hostiles, en fait un outil sans égal dans l'investigation des propriétés des molécules au sein de leur environnement.

Les relations du domaine scientifique relevant de la section 04 avec le monde socio-économique sont très diversifiées. L'implication de la physique des plasmas chauds dans les grands programmes nationaux relevant de l'énergie, ou de certains programmes de Défense est claire. Les acquis de la physique moléculaire sont valorisés pour des diagnostics dans l'atmosphère proche ou lointaine, dans des milieux réactifs comme ceux utilisés dans des procédés de microélectronique. Certaines études de physique des ions et des atomes trouvent des applications dans le domaine de la santé, ou de la métrologie. L'optique et les lasers trouvent en permanence de nouvelles applications. Au-delà des domaines connus des télécommunications, du traitement des matériaux et des études d'environnement, pour lesquels de nouvelles sources plus performantes peuvent représenter des enjeux importants, on entrevoit de nouvelles ouvertures dans la physique des interactions avec les surfaces, dans des diagnostics plus fins – ou complètement nouveaux – avec les sources X ultra-brèves, et en nanophysique. Ainsi, bien qu'un nombre limité de ces applications soit détaillé dans la suite, convient-il d'insister sur le fait que bien des recherches dans notre domaine, même si elles sont fondamentales, ont trouvé et trouveront des valorisations significatives.

1 - OBJETS COMPLEXES

1. 1 PHYSIQUE DES PETITS SYSTÈMES ET INTERACTION AVEC LES SURFACES

Par “petits systèmes”, on entend les atomes, molécules de toutes tailles, dans leurs états excités et superexcités, neutres, chargés ou multichargés, les agrégats et les nano- ou micro-solides (grains), isolés ou en interaction mutuelle ou avec une surface ou un solvant. Même pour les systèmes les plus simples, des mécanismes complexes (interaction lié-continu, problème à 3 corps, etc.) se produisent. Ils sont analysés – et parfois exhaustivement – à l’aide de techniques expérimentales très performantes. De telles études (en dynamique réactionnelle, par exemple) peuvent constituer un préalable à celles de systèmes plus vastes. L’évolution générale du domaine va nettement vers (i) plus de complexité (surfaces, solvation, molécules souples, chirales, biologiques) ; (ii) plus de raffinement dans l’analyse expérimentale (détection de fragments en coïncidence, spectroscopie ZEKE (ZEro Kinetic Energy Spectroscopy), effet Raman dans les états excités, contrôle du nombre de molécules d’un solvant, observation de molécules uniques) ; (iii) un contrôle plus effectif des molécules (contrôle cohérent, manipulation d’atomes par microscopie par effet tunnel).

À cause des effets de corrélations électroniques, les ions, les atomes et les molécules excités peuvent être déjà considérés comme des objets complexes. L’étude la plus directe de leur structure et de leur dynamique se fait par interaction avec le rayonnement synchrotron, auquel on adjoint, le cas échéant, un laser accordable. Les processus les plus largement étudiés sont la photo-absorption, la photo-ionisation simple ou multiple.

La physique des ions multichargés est, quant à elle, tributaire des sources et de leurs performances. Dans l’étude des processus de capture multiple avec stabilisation, en phase gazeuse, des progrès théoriques et expérimentaux importants sont réalisés, grâce, en particulier, à des méthodes

sophistiquées de coïncidences. Bien qu’il mette en jeu des mécanismes encore mal compris, le domaine des “vitesses intermédiaires” (vitesse du projectile proche de celles des électrons) reste peu exploré, faute d’accélérateurs munis de sources ECR. Il en va de même de l’étude de la capture multiple à partir d’atomes lourds. Outre quelques expériences autour des ions multichargés refroidis (anneaux de stockage, sources EBIT) surtout destinées à l’étude de la recombinaison diélectronique, de nouvelles orientations mettent en jeu l’interaction d’ions multichargés avec des systèmes complexes tels que molécules, agrégats et surfaces. Lors d’une interaction avec les molécules et les agrégats, la propension des ions multichargés à capturer des électrons conduit à des états fortement ionisés de la cible, puis à la fragmentation de celle-ci. Ces processus sont par exemple étudiés pour les agrégats métalliques comme $(\text{Na})_n$ (voies de fragmentation, fission, évaporation). Un autre axe de recherche utilise les agrégats tels que C_{60} comme cible possédant un grand nombre d’électrons peu liés. La capture multiple sur les couches externes du projectile conduit à la formation d’atomes creux, atomes très excités dont les couches K et L sont vides.

L’étude des interactions ions multichargés-surface développée près des sources EBIS et ECR est celle qui connaît le développement le plus important dans plusieurs pays. Le premier aspect remarquable est l’émission secondaire très importante, qui peut atteindre une centaine d’électrons. La capture multiple d’électron par l’ion incident conduit ici encore à la formation d’atomes creux qui possèdent soit une structure d’états de Rydberg si la capture survient dans le vide, à une vingtaine d’Angströms de la surface, soit une structure à couches M et N si la capture a lieu sur ou sous la surface. Les propriétés de ces atomes, leur mode de déclin en particulier, constituent un outil original pour caractériser la dynamique de l’interaction ion-surface. Des expériences récentes utilisant la détection d’électrons Auger et de rayons X ont mis clairement en évidence le rôle joué par la nature de la surface (métal, isolant ou semi-conducteur) sur les mécanismes de capture induits par l’approche de l’ion multichargé. Des expériences plus évoluées de multi-corrélation, utilisent des détecteurs de grande efficacité pour analyser en coïncidence les nombreuses particules issues d’une seule collision (élec-

trons, ions positifs ou négatifs, neutres désorbés, photons). Le développement récent de petites sources ECR Nanogan doit permettre de diversifier encore les investigations expérimentales, du moins pour les ions de charge moyenne. Par ailleurs, l'utilisation de sources d'ions très chargés de faible énergie a ouvert de nouvelles voies dans l'étude de la formation de nano-structures : cratères creusés par l'explosion coulombienne induite par l'impact d'un ion très chargé sur un isolant, marquage ou décapage très local de semi-conducteurs par rétro-diffusion d'ions, etc. Différentes approches théoriques s'attachent à décrire les interactions ion multichargé-surface. Comme pour la phase gazeuse, la nécessité de concepts nouveaux pour décrire la capture multiple et simultanée de plus de deux électrons est un enjeu dans la compréhension de ces processus.

Les petits systèmes polyatomiques sont extrêmement complexes dans la mesure où il s'agit de systèmes à N corps dont la description théorique reste très difficile et quantitativement insuffisamment prédictive. Il en résulte une insuffisance dans la connaissance des surfaces de potentiel, particulièrement dans les régions où se produisent les ruptures et formations de liaisons, les transferts de proton ou d'électron, les isomérisations. En contrepartie, des méthodes expérimentales très raffinées combinant jets supersoniques, matrices à basse température, spectroscopie moléculaire et spectrométrie de masse, polarisation laser, détection résolue spatialement, continuent d'être développées pour contrôler soit l'état initial (géométrie, énergie), soit l'état final. L'un des développements les plus récents est l'observation de l'évolution des paquets d'onde dans les états excités durant des processus tels que la photodissociation (lasers femtoseconde). Ces méthodes de physique moléculaire ont largement diffusé vers d'autres domaines, comme les surfaces, les plasmas et la physique atmosphérique. Certains succès spectaculaires récents de la chimie quantique dans l'explication de problèmes restés longtemps incompris sont à souligner. On peut citer l'adsorption de H_2 sur Si(100), qui est liée à la dynamique d'oscillation des dimères de Si et qui a été comprise grâce à des calculs quantiques 6D. Les progrès réalisés laissent entrevoir la possibilité qu'un jour les calculs de surfaces guident les expérimentateurs. Cela est nécessaire pour progresser

significativement dans l'observation des intermédiaires de réactions chimiques. Il est à noter que les théoriciens ont précédé les expérimentateurs dans le domaine nouveau du *contrôle cohérent*, où l'on cherche à orienter la réponse d'une molécule à deux faisceaux laser cohérents entre eux en agissant sur leur déphasage mutuel. Une grande variété d'effets possibles a été démontrée (direction d'éjection des fragments, taux de dissociation, etc.). Toujours dans le domaine théorique, les calculs de dynamique moléculaire prennent une importance grandissante dans la compréhension de systèmes très complexes à l'état fondamental (géométrie, solvation, sites, etc.). La simulation numérique joue quant à elle un rôle essentiel dans l'interprétation des images de microscopie en champ proche, à force atomique, voire même à effet tunnel.

Depuis déjà une dizaine d'années, la physique des agrégats libres connaît un bel essor. Ses thèmes et ses approches théoriques et expérimentales sont désormais bien identifiés. Modèles de systèmes finis pour la thermodynamique (structure, ordre et désordre, évaporation, instabilités) et la dynamique moléculaire (fragmentations), ces agrégats sont aussi des modèles de confinement quantique (modèles en couches et super-couches). Leur interaction avec une surface devient un champ de recherche très riche et prometteur (nouveaux matériaux optiques et magnétiques nano-structurés).

Dans le domaine des surfaces, les collisions d'ions et d'atomes ont surtout pour objet d'étude des transferts de charge et d'énergie (analyse de structures atomiques et électroniques). Les surfaces isolantes et/ou imparfaites (adsorbats) sont, à cet égard, très intéressantes. Dans ce domaine, les collisions inélastiques d'électrons apportent leur propre contribution, en permettant une étude détaillée des dépôts d'énergie. L'analyse de l'absorption par des méthodes d'optique non linéaire telles que doublement (SHG : Second Harmonic Generation) et somme (SFG : Summed Frequency Generation) de fréquences infrarouges et visibles, et le développement des observations et des manipulations par microscope à effet tunnel (STM : Scanning Tunnel Microscopy), sont parmi les faits les plus marquants. La technique SGH a permis d'obtenir des résultats originaux (adsorption

de H₂ sur Si(100) grâce à ses spécificités (mise en œuvre à toute pression, information structurale et, pour l'adsorption, résolution temporelle). Il est désormais possible de mesurer par SFG les flux d'énergie s'échangeant entre électrons, phonons et vibrations de l'adsorbat, en discriminant les sites d'adsorption par leur fréquence infrarouge. L'apport de la SFG dans le cas d'environnements denses a été spectaculairement démontré en électro-chimie, avec la mise en évidence des molécules présentes sur une électrode en fonction du potentiel de celle-ci. Les méthodes SHG et SFG sont bien adaptées pour apporter des informations permettant une comparaison directe de la réactivité des surfaces réelles, i.e. à pression élevée, avec celle des surfaces modèles, i.e. en ultra-vide ("pressure gap"). Les lasers à électrons libres dans la gamme spectrale 10-40 μm, bientôt disponibles, permettront de sonder l'oxydation et l'halogénéation des surfaces et d'accéder directement aux vibrations substrat-adsorbat.

La chimisorption des molécules organiques et leur structure électronique reste un sujet important en raison de leurs propriétés de catalyse, de mouillage et d'adhésion. La photodésorption, par processus électronique, de molécules sur métal ou semi-conducteur n'est toujours pas quantitativement comprise. On peut s'attendre à des avancées nouvelles dans ce domaine grâce à deux types de lasers encore peu ou pas utilisés pour modifier les surfaces : les lasers VUV (qui pourraient permettre de réaliser des excitations plus sélectives sur les adsorbats) et les lasers femtoseconde (qui permettent d'obtenir des électrons très chauds dans le matériau sans pour autant échauffer le réseau cristallin).

L'observation et la manipulation d'objets uniques (atomes, molécules, électrons et ions) constitue une importante nouveauté en physique, qui peut avoir des conséquences encore difficiles à prévoir : écluses à un électron, blocage de Coulomb, manipulation laser de molécules individuelles, manipulation avec le STM (Scanning Tunnel Microscope). De manière générale, les microscopes en champ proche (champ optique inclus) ouvrent la voie à une nouvelle nanophysique : optique et interactions électromagnétiques, spectroscopie, manipulation d'atomes et réactivité.

L'optique reste le domaine où l'on sait préparer et manipuler le plus proprement des états quantiques cohérents d'objets mésoscopiques ou macroscopiques. Ces objets sont les modes d'une cavité, dans lesquels on peut contrôler le nombre de photons ou l'état du champ. D'autres domaines comme les superfluides, les supraconducteurs, les conducteurs normaux mésoscopiques, et bientôt les condensats d'atomes froids, sont également intéressés par la préparation et la manipulation de l'état quantique de systèmes macroscopiques.

Les dernières années ont révélé une richesse insoupçonnée de possibilités de manipulation de l'information quantique. La compression des fluctuations quantiques a permis d'atteindre une diminution suffisamment significative du bruit de détection de la lumière pour que des applications soient envisagées dans des expériences où le "bruit de grenaille" est le facteur limitant. Des mesures quantiques non destructives ont été réalisées expérimentalement sur un faisceau lumineux, ouvrant d'autres voies pour la recopie à un niveau quantique de l'information qu'il porte. Des cohérences entre deux états quantiques différents d'un objet mésoscopique ont pu être créées et détectées, représentant une première réalisation de l'état paradoxal du *chat de Schrödinger*. Plus concrètement, ces états permettent d'envisager une étude expérimentale du phénomène de décohérence qui reste une limitation très importante dans la manipulation d'objets quantiques macroscopiques.

On a vu également progresser la réflexion théorique sur les systèmes quantiques macroscopiques corrélés, avec des idées d'applications encore lointaines, mais conceptuellement intéressantes. L'une est la cryptographie quantique, montrant des possibilités inédites en matière de protection de l'information. L'autre est l'idée qu'un "ordinateur quantique" est notablement plus efficace qu'un ordinateur classique. Néanmoins, cette dernière idée est très discutée, le phénomène de décohérence pouvant jouer un rôle négatif très important.

1. 2 PHYSIQUE DES PLASMAS CHAUDS : DES SYSTÈMES COMPLEXES FACE À DE NOUVELLES PERSPECTIVES TECHNOLOGIQUES

Les plasmas chauds de laboratoire peuvent être considérés comme des paradigmes de systèmes permettant la mise à l'épreuve des méthodes d'analyse et de contrôle de la complexité. Possédant les propriétés d'un gaz et d'un conducteur, constitués de plusieurs espèces de particules de masses et de charges différentes, nécessitant souvent une description microscopique, les plasmas chauds sont des milieux dont la dynamique est compliquée, d'autant plus qu'en laboratoire ils n'existent que sous des formes très inhomogènes, instationnaires et fugaces. Les applications actuelles et à venir nous obligent à maîtriser ce milieu capricieux et à imaginer des stratégies scientifiques permettant d'en comprendre et d'en contrôler la physique.

Les grandes machines de confinement magnétique offrent un magnifique champ d'expérimentation de la science du complexe. Les efforts de diagnostic, les données accumulées, les multiples moyens de contrôle du courant, de la densité, de la température des espèces, tout cela aboutit dans un premier temps à l'établissement d'une stratégie empirique qui a fait ses preuves. Beaucoup plus intéressante pour la science fondamentale, la compréhension a fait de sensibles progrès grâce à de nouveaux diagnostics, aux simulations numériques et à la modélisation. Corrélativement, les expériences en laboratoire à petite échelle fournissent des thèmes ou des idées qui peuvent être mises en œuvre à moindre coût et dans des conditions de souplesse beaucoup plus favorables à l'innovation. Par exemple des techniques de mesure par diffusion Thomson, par fluorescence induite résolue dans le temps, par spectroscopie à haute résolution ont pu atteindre un degré de sophistication qui donne accès à une description très précise des mécanismes non linéaires et turbulents. On doit citer également les tentatives de contrôle du chaos dans les décharges, les effets collectifs nouveaux dans les plasmas poussiéreux, les études sur le transport anormal.

Cette complexité se retrouve tout autant dans les plasmas photo-induits, mais avec l'ingrédient supplémentaire de l'onde laser. Celle-ci constitue une source d'énergie libre considérable pour alimenter l'excitation d'instabilités multiples qui se couplent, se contrecarrent ou se renforcent les unes les autres. Ces instabilités sont d'intéressants objets d'étude de systèmes non linéaires, mais surtout les résultats les plus récents montrent qu'elles ont des conséquences importantes pour le dimensionnement des grandes installations de la fusion inertielle ainsi que pour l'accélération de particules par battement ou sillage, ou la production de rayons X. De fait, ce domaine de la physique s'apprête à vivre une double révolution dont les causes sont respectivement :

- la mise au point de lasers super-intenses très souples d'emploi et produisant des impulsions femtoseconde dans le domaine des centaines de terawatts,

- l'arrêt des essais nucléaires qui fait que le CEA-DAM (tout comme le DOE aux États-Unis avec le projet NIF) fait porter tous ses efforts vers la simulation et les expériences en laboratoire, avec en particulier le développement programmé sur une quinzaine d'années d'un laser délivrant des énergies de l'ordre de 2 mégajoules.

Une partie de l'apport des impulsions ultrabèves à la physique des plasmas et à la mise au point de rayonnements secondaires sera abordée indépendamment ci-dessous. Ce thème n'est cependant pas décorrélaté du thème de la fusion, l'exemple classique étant celui de l'accélération des particules par sillage laser, qui est né des études sur les instabilités Raman-avant dans les plasmas, elles-mêmes s'enchaînant sur des études de propagation et d'autofocalisation relativiste, dont une application sera peut-être l'allumage dit "rapide" des cibles de confinement inertiel. Ces études mettent en œuvre des moyens importants, mais néanmoins à la taille d'un organisme comme le CNRS. En revanche, le développement d'installations comme le laser mégajoule met en jeu une stratégie à très long terme et des moyens formidables qui vont bien au-delà des possibilités du CNRS, pour lequel il s'agit donc à la fois d'une chance et d'un danger. En effet, le caractère scientifique d'un tel investissement est

très marqué, et l'aspect dual d'une telle entreprise ne peut donc laisser indifférente la communauté scientifique, qui doit cependant éviter les écueils d'un refus brutal d'implication ou d'un trop grand enthousiasme menant à une surestimation de leurs propres capacités.

Il faut enfin noter que les années récentes ont vu se développer la possibilité de produire des plasmas chauds et modérément denses par des moyens purement électriques, grâce au progrès des "Z-pinch", et qui constituent des sources de rayonnement X d'excellent rendement.

Les compétences en physique des plasmas chauds au CNRS se sont bâties sur plus de vingt ans, grâce parfois au développement d'outils compétitifs de taille intermédiaire qui lui sont propres, et par une collaboration avec les grandes installations, celles du CEA en France ou d'ailleurs (États-Unis, Japon, Russie). Ces compétences scientifiques sont multiples et elles débordent largement le cadre des plasmas laser pour inclure les équipes qui interviennent sur les instruments de la fusion magnétique, sur les Z-pinches ou sur les ions lourds. Néanmoins, l'effort principal a porté, au CNRS, sur les plasmas laser avec une communauté rassemblée autour de – ou utilisant – un grand équipement qui lui est propre. Une politique équilibrée entre thèmes liés à la fusion et thèmes de physique fondamentale et appliquée a permis à ces équipes de développer des compétences complémentaires. Les objectifs de ces développements peuvent être aussi industriels, par exemple avec des applications à la lithographie pour l'électronique à $0.1\mu\text{m}$. Bien que beaucoup moins programmatique que les études entreprises sur les très grandes installations, la souplesse d'emploi et la flexibilité des installations intermédiaires contribuent de façon très significative aux sciences de l'interaction laser-matière pertinentes pour la fusion. Par exemple et de façon non exhaustive, sur la compréhension des mécanismes non linéaires dans les instabilités dites paramétriques, des avancées réelles ont été réalisées sur des installations modestes, en attendant l'accès à de plus grands instruments.

2 - ATOMES FROIDS ET OPTIQUE ATOMIQUE

Depuis la fin des années 80, les physiciens ont appris à utiliser les forces radiatives pour contrôler le mouvement des atomes à l'aide du rayonnement laser. Ils ont ainsi ouvert un nouveau champ de recherche : la réalisation et l'étude de milieux dilués ultra-froids, nouvel état de la matière aux propriétés inhabituelles. Ce nouveau domaine, dont l'étude est en elle-même un sujet toujours très actif, a déjà donné naissance à de nombreuses applications : collisions ultra-froides, optique et interférométrie atomiques, métrologie des fréquences (cf. *infra*). La découverte récente de la possibilité d'obtenir, en milieu dilué ultra-froid, la condensation de Bose-Einstein est un fait dont il est difficile d'apprécier toutes les conséquences. Le "laser à atomes" est peut-être plus proche qu'on ne l'espérait.

2. 1 MATIÈRE DILUÉE ULTRA-FROIDE

Piégeage et refroidissement

Depuis maintenant plus de dix ans, le refroidissement par laser n'a pas cessé de progresser, franchissant ou contournant toutes les "barrières" successives, depuis la limite Doppler (fraction de mK) atteinte en 1985, jusqu'à la limite du recul d'un seul photon (μK), franchie à 3 dimensions en 1994. On atteint aujourd'hui la gamme de quelques nK. Les plus performantes de ces méthodes n'ont certainement pas atteint leurs limites. L'affinement de leur compréhension met en jeu les aspects les plus subtils de l'interaction matière-rayonnement et de la physique statistique (vols de Lévy).

Un des résultats spectaculaires a été l'observation et la compréhension des réseaux d'atomes, structures organisées par les potentiels lumineux périodiques dans lesquels les atomes viennent se piéger. La possibilité d'augmenter la densité atomique ouvrirait la voie à des effets de statistiques quantiques.

Dans le domaine du piégeage par laser, les pièges magnéto-optiques se sont imposés comme

un outil déjà standard de la physique atomique et des collisions, dont il faut encourager la diffusion. En même temps, des progrès dans les pièges sans champs magnétiques auraient une importance considérable dans les domaines où les champs magnétiques posent problème, par exemple les applications métrologiques.

Notons enfin un défi formidable posé aux physiciens de ce domaine : étendre ou généraliser les méthodes de refroidissement et piégeage aux molécules.

Collisions ultra-froides

Les interactions entre atomes froids jouent un rôle important dans les expériences de refroidissement d'atomes. Elles sont en particulier à l'origine des pertes en atomes des pièges. Les travaux récents dans ce domaine concernent d'une part l'étude des collisions binaires, d'autre part la caractérisation d'effets collectifs associés à une assemblée d'atomes.

Outre l'étude de réactions induites dans les pièges à atomes, la physique des collisions froides connaît un effort expérimental important en Europe, avec le programme GEMINI aux Pays-Bas pour la production de faisceaux intenses d'atomes froids. Utilisant la manipulation par laser de faisceaux d'atomes métastables de Néon, l'objectif est de se doter d'un jet à la fois très intense et très monocinétique, avec tous les avantages que cela présente pour la mesure des observables collisionnelles.

Plusieurs expériences de *photoassociation* mettant en jeu deux atomes d'alcalins ont été développées dans les pièges magnéto-optiques 2D, où l'on atteint des densités d'atomes de l'ordre de 10^9 atomes/cm³, ou 3D plus denses avec quelques 10^{11} atomes/cm³ et des températures de quelques μ K ou quelques dizaines de μ K. Dans une première étape une paire d'atomes froids en collision absorbe un photon décalé vers le rouge de quelques cm⁻¹ par rapport à la raie de résonance atomique : on peut, dans certains cas, peupler ainsi un niveau vibrationnellement excité du dimère correspondant corrélé à la première limite de dissociation. La formation de cet état lié est détectée soit par la mesure

des pertes d'atomes induites par la formation des dimères, soit en utilisant un second photon pour former un état autoionisant du dimère et en détectant les ions produits. Ces expériences de spectroscopie à deux couleurs permettent une étude à très haute résolution de la molécule formée (Li₂, Na₂, ...), et en particulier de la partie longue portée des potentiels d'interaction.

Sur le plan théorique, les méthodes de la chimie quantique sont mises à profit pour calculer les courbes de potentiel avec une grande précision, incluant en particulier la structure fine à grande distance internucléaire, le rôle des symétries moléculaires et le choix des bases d'états appropriées. Interprétation et prédiction sont très couplées aux expériences en cours dans différents laboratoires dans le monde. De nouvelles approches utilisant des méthodes purement quantiques et des méthodes de paquets d'onde sont développées actuellement. Le rôle des interactions entre atomes pour la compréhension de la physique des condensats de Bose-Einstein est dès à présent un sujet intéressant, et plusieurs groupes impliqués dans l'étude des collisions froides orientent actuellement une partie de leur activité vers l'étude de ces condensats.

On peut atteindre, pour un gaz refroidi d'atomes de Rydberg dans un piège magnéto-optique, un régime pour lequel on peut considérer que l'interaction dipôle-dipôle a lieu entre atomes localisés à des positions fixes dans le piège (gaz de Rydberg gelé). La manifestation d'effets collectifs dans les interactions résonnantes entre atomes de Rydberg a été récemment observée, et ces études vont évidemment se poursuivre.

2. 2 CONDENSATS DE BOSE-EINSTEIN ; LASERS À ATOMES

L'obtention de la condensation de Bose-Einstein d'atomes alcalins ultra-froids est un des résultats très marquants des années récentes. L'expérience a mis en jeu en cascade les méthodes du refroidissement et piégeage laser, puis le refroidissement évaporatif mis au point sur les gaz d'hydrogène polarisé.

Ce nouvel état de la matière est différent de l'hélium superfluide car, en milieu dilué, les interactions interatomiques directes, tout en intervenant dans le phénomène, jouent néanmoins un rôle moins important, relativement au phénomène de dégénérescence quantique. Il en est de même avec les excitons dans les semi-conducteurs, pour lesquels des phénomènes d'amplification cohérente viennent d'être mis en évidence. Les études des propriétés de ces condensats n'en sont encore qu'à leur tout début.

Par ailleurs, un condensat de Bose-Einstein, ensemble d'atomes dans le même état quantique, est l'équivalent, pour l'optique atomique, de la cavité laser de l'optique traditionnelle (ensemble de photons dans le même mode). Cet objet exotique peut donc rapidement avoir des applications considérables. Mais il faut noter qu'un an après sa découverte, l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein d'alcalins reste un tour de force mal maîtrisé. Il est donc essentiel d'améliorer les méthodes, ou d'en inventer de nouvelles.

Une autre invention capitale reste à faire, c'est celle du "laser à atomes", c'est-à-dire d'un dispositif capable d'émettre un faisceau cohérent d'atomes de façon continue, et non sous forme de bouffées. Plusieurs voies ont déjà été suggérées mais le sujet est encore très ouvert.

2. 3 OPTIQUE ATOMIQUE

C'est une science récente qui s'est spectaculairement développée depuis les années 88-90. L'idée générale est d'agir sur le mouvement externe (i.e. du centre de masse) des atomes (ou des molécules) et de réaliser, pour les atomes, les éléments équivalents de ceux de l'optique lumineuse : lentilles, prismes, miroirs, cavités, lames séparatrices et interféromètres. L'avantage des atomes sur les particules matérielles simples est qu'ils possèdent une structure interne que l'on peut mettre à profit. C'est la raison pour laquelle la manipulation par laser est devenue l'outil favori de l'optique atomique, bien qu'il en existe d'autres : les premiers interféromètres, par exemple, utilisent l'interaction avec un champ électrostatique, avec des réseaux de micro-

fentes ou avec un champ magnétique inhomogène dépendant ou non du temps. L'interaction avec le rayonnement a, quant à elle, donné naissance à une grande variété de dispositifs optiques, dans lesquels il existe souvent les versions spatiale et temporelle du même principe de base. Toutes ces techniques, quoique délicates, sont aujourd'hui bien au point, ce qui n'exclut pas que de nouvelles méthodes voient le jour dans ce domaine très actif.

De très nombreux résultats ont déjà été obtenus avec les interféromètres existants, en Europe, en Russie, aux États-Unis et au Japon. Ces résultats démontrent que ces instruments sont des sondes extrêmement sensibles des interactions subies par l'atome, qu'il s'agisse de champs extérieurs (collisions, champs statiques, champ de rayonnement, gravité) ou d'effets inertiels (effet Sagnac et gyroscopes atomiques). Ces interféromètres sont donc des outils de choix pour des applications fines, dont certaines sont encore potentielles (métrologie et mesure de \hbar/m , mesures de polarisabilités, microgravimétrie) ainsi que dans des expériences fondamentales de mécanique quantique (effets topologiques, tests de neutralité, complémentarité, chats de Schrödinger, etc.).

Désormais, l'optique atomique est une discipline décidément tournée vers les applications : nanolithographie, nanosonde, nanodéposition. On peut espérer réaliser une focalisation poussée d'un jet d'atomes de quelques meV, car la longueur d'onde de de Broglie reste inférieure au nanomètre. Une des voies est manifestement celle des miroirs atomiques concaves, mais leur réalisation pose des problèmes fondamentaux et technologiques considérables, puisqu'ils doivent présenter une "rugosité" très inférieure à la longueur d'onde de de Broglie. Réciproquement, les atomes constituent une sonde de rugosité susceptible de faire progresser la technologie des miroirs de très haute qualité, composants essentiels dans de nombreux domaines de l'optique moderne : optique quantique, lasers, détecteurs d'ondes gravitationnelles (Virgo).

Le développement des condensats de Bose-Einstein ou des lasers à atomes va sans doute provoquer une révolution dans le domaine de l'optique atomique. C'est en particulier le cas pour l'holographie atomique, qui devrait se développer

rapidement à condition de franchir un certain nombre de goulots technologiques. Ajoutons que les méthodes d'interférométrie atomique contribueront certainement à l'étude des propriétés de ces mêmes condensats.

3 - OPTIQUE

3. 1 MATÉRIAUX ET SOURCES

Durant les vingt dernières années, le domaine de l'optique des solides a été profondément modifié par l'apparition de matériaux artificiels dont les propriétés sont déterminées durant l'élaboration. Les premiers exemples en ont été les semi-conducteurs en couches minces avec des épaisseurs du même ordre ou plus petites que les longueurs associées aux extensions spatiales des fonctions d'ondes électroniques. Après les percées réalisées avec les puits quantiques (confinement dans un espace bidimensionnel 2D), la tendance à augmenter le confinement reste forte, et l'élaboration des fils quantiques (1D) et des points quantiques (0D) reste encore un défi à maîtriser, malgré des premiers succès très prometteurs. L'optique est fortement impliquée dans ces études car, d'une part, elle apporte la signature du confinement par l'étude des niveaux d'énergie et, d'autre part, ces structures artificielles sous-tendent le développement des diodes lasers. La maîtrise technologique acquise est actuellement mise à profit dans le domaine du magnétisme (multicouches et nanostructures magnétiques).

Les effets de confinement peuvent résulter d'une élaboration techniquement délicate (épitaxie par jet moléculaire, gravure, ...) ou surgir de modes de préparation aidés par des phénomènes naturels. Le silicium poreux vient d'être l'objet d'études poussées pour montrer que la luminescence exceptionnelle qu'on y observe provient de nanodomaines de silicium laissé intact. La difficulté de maîtriser ces derniers fait ralentir cette recherche au profit d'autres modes d'élaboration. Par ailleurs, les nanocristaux de semi-conducteurs dilués dans des

matrices de verre ou de sol-gel restent un sujet d'études favori car leur obtention est plus facile et les progrès dans le contrôle de leur taille permet d'avoir des distributions quasi monodisperses. Enfin, dans la limite des très petites tailles, les agrégats libres ou supportés font la jonction avec la physique de l'atome.

Dans l'étude optique des solides, le magnétisme a longtemps consisté à aider à la caractérisation de niveaux d'énergie par levée de dégénérescence. Depuis, les semi-conducteurs semi-magnétiques ont mis en lumière les interactions des spins des électrons avec ceux des ions. Actuellement, dans les structures à puits quantiques, les ions magnétiques peuvent être introduits dans le puits, dans les barrières ou à l'interface. L'effet Faraday géant devrait faire progresser l'enregistrement magnétique. Vues les performances des champs magnétiques pulsés, en particulier l'allongement de la durée d'impulsion, les expériences d'optiques vont devenir compatibles avec les très hauts champs. Enfin, la photoémission peut maintenant produire des électrons polarisés de spin.

La compétition scientifique et industrielle dans la conception et la réalisation de lasers bleu-violet a déplacé le centre d'intérêt depuis les matériaux de base que sont le silicium et l'arséniure de gallium vers les matériaux à grande bande d'énergie interdite (grand gap). Les semi-conducteurs II-VI sont de bons candidats, mais il reste un important problème technologique à résoudre sur la migration de dislocations pendant le fonctionnement du laser, phénomène qui réduit la durée de vie du dispositif. De façon surprenante, les dispositifs en InGaN (nitride d'indium et de gallium) semblent plus résistants bien que l'accord de maille avec le substrat soit moins favorable. Toujours dans les grands gaps, une autre problématique consiste en l'étude de la création des défauts *via* la formation d'excitons auto-piégés dans les matériaux transparents tels le quartz ou les fluorures, sujet redevenant d'actualité du fait des besoins liés aux progrès des lasers à haut flux.

Parmi les développements instrumentaux récents qui ont un impact important sur l'étude des solides par l'optique au sens large, on trouve le rayonnement synchrotron (LURE, ESRF, SOLEIL dans le futur) et les lasers à électrons libres qui ont

étendu la gamme spectrale depuis le lointain IR jusqu'au VUV et aux rayons X. Les lasers femtosecondes permettent des observations en des temps plus courts que la plupart des temps caractéristiques des solides, ce qui équivaut à une observation en super ralenti. Enfin, les études optiques semblaient réhibitivement limitées à une résolution spatiale de l'ordre de la longueur d'onde : la microscopie en champ proche vient de lever cet obstacle.

L'optique non linéaire est actuellement en forte activité. L'optimisation de cristaux pour le doublage de fréquence reste une préoccupation importante, visant en particulier la largeur en fréquence de l'accord de phase. Mais c'est surtout le domaine plus vaste des changements de fréquences qui évolue le plus vite : génération et amplification paramétriques, oscillateurs paramétriques, production d'infrarouge moyen par soustraction de fréquences, modulation de phase en sont quelques exemples. Par ailleurs de nouveaux effets physiques sont testés pour obtenir de forts effets non linéaires : on peut citer l'exemple récent de l'écrantage du champ piézo-électrique d'une structure à puits quantiques II-VI contrainte ou les effets géants non linéaires du troisième ordre par cascade. Il existe aussi un effort de recherche sur les matériaux à sécurité oculaire. Enfin, les études des surfaces n'étaient pas vraiment le domaine de l'optique : elles sont en voie de le devenir en utilisant la brisure de continuité que représente une surface pour les phénomènes non linéaires ou en faisant des expériences de type pompe-sonde sur les espèces adsorbées.

On ne peut pas ne pas évoquer ici le domaine de l'optoélectronique ou celui du calcul optique, même s'ils relèvent plutôt des sciences pour l'ingénieur. Par ailleurs, les études sur et avec les fibres optiques, dopées ou non, remplissent des volumes. À la frontière de l'optique, on peut également citer la recherche sur une optique pour rayons X, poussée par le développement espéré du laser à rayons X.

Une des approches des milieux désordonnés se fait souvent par l'optique ; les verres ou les amorphes en sont de bons exemples. Lorsque la dimension caractéristique se rapproche de la longueur d'onde, les phénomènes de diffusions multiples amènent à des allongements de chemin

optique remarquables. L'analyse en est complexe et utilise parfois les théories fractales ou les modèles de la localisation faible (cf. *infra*).

Dans les études des solides aux temps très courts, la notion de cohérence prend de plus en plus d'importance. Par exemple, l'évolution des paquets d'onde électroniques créés en phase est réversible tant qu'ils n'ont pas perdu leur cohérence, permettant de créer des portes optiques ultra-rapides. La physique sous-jacente est cependant subtile car, dans ces régimes, les théories statistiques habituelles (Fermi-Dirac, Bose-Einstein) ne s'appliquent plus, et une nouvelle physique à N corps est à développer.

Passer d'un système tridimensionnel à un système 2D a fait énormément progresser les diodes lasers. Un gain est également attendu en confinant encore plus les électrons (1D et 0D), mais il est intrinsèquement plus faible et il est contrebalancé par des difficultés technologiques accrues. Plutôt que de confiner les électrons, la théorie montre qu'il devient avantageux de confiner les photons, c'est-à-dire de réduire les modes optiques permis à ceux directement utiles à l'effet laser recherché. Les cavités minces à miroirs de Bragg (multicouches réfléchissantes), certaines diodes à émission surfacique sont en fait des dispositifs qui utilisent partiellement ce principe dans la dimension perpendiculaire aux couches. Pour complètement réaliser le confinement des photons, il faut le faire à 3 dimensions, ce qui conduit aux matériaux à bande interdite photonique (analogue aux bandes d'énergie interdites des semi-conducteurs). Un gros effort reste à faire pour passer d'une réalisation dans le domaine des ondes millimétriques à une structure utilisable dans le visible ou le proche infrarouge.

3. 2 IMPULSIONS ULTRA-BRÈVES

Sources nouvelles

Une raison majeure de l'utilisation des méthodes femtosecondes en physique atomique et moléculaire ou en physique de la matière condensée est que, dans un intervalle de quelques dizaines de femtosecondes, peu d'événements surviennent,

et ceci même dans les molécules très complexes. Il faut réaliser qu'à ces échelles de temps, la chimie par exemple se résume à des événements de rupture ou de création de liaisons chimiques, et ensuite à la modification très progressive de la conformation ou de l'état vibrationnel de la molécule, avec adaptation éventuelle au milieu environnant. Les lasers femtosecondes fournissent donc un procédé pour découper en tranches simples des phénomènes très complexes. L'apparition des lasers au saphir dopé titane, leur facilité de mise en œuvre, rend cette science de l'ultra-rapide accessible à tous (ou presque !). Des oscillateurs pompés par laser à solide continu et pompés par diodes parviennent à émettre directement (sans amplification ultérieure ni compression) des impulsions extrêmement brèves de l'ordre de 10fs.

Les perspectives de banalisation des sources de moyenne énergie s'accroissent du fait que le principe de génération d'impulsions par autofocalisation, démontré d'abord pour le saphir dopé au titane, a été étendu à des matériaux solides nouveaux. Des démonstrations ont été déjà réalisées avec des matériaux amplificateurs dopés à l'ion chrome Cr^{3+} (LiSAF, LiCAF, ...), ou même avec des matériaux utilisés depuis longtemps tels les verres ou les cristaux dopés à l'ion néodyme Nd^{3+} . Cette extension ouvre dès maintenant des perspectives de miniaturisation des lasers femtosecondes et des amplificateurs associés car, contrairement au saphir dopé au titane ou aux colorants, ces matériaux sont susceptibles d'être excités par diodes lasers. Cette voie est d'autant plus intéressante que les industriels français du laser semblent très intéressés à s'y engager.

De même, le couplage de ces sources avec les méthodes de l'optique non linéaire ouvre des perspectives de génération d'impulsions brèves dans de nouveaux domaines spectraux. Les générateurs paramétriques à base de cristaux non linéaires produisent déjà des impulsions ultra-brèves dans le proche infrarouge jusqu'à quelques microns de longueur d'onde et bientôt dix ou vingt microns. Ces méthodes offrent déjà une alternative aux instruments aussi lourds que les lasers à électrons libres, seuls capables jusqu'à présent de produire des impulsions optiques courtes (quelques dizaines de picosecondes) dans ce domaine spectral. Plus loin dans l'infra-rouge, les phénomènes de redresse-

ment optique dans des cristaux non linéaires ou dans des semi-conducteurs permettent d'engendrer avec des systèmes lasers très compacts et peu onéreux des ondes électromagnétiques monocycles dans le domaine des terahertz, et depuis peu dans le domaine infrarouge, aux longueurs d'onde supérieures à 4 ou 5 microns, avec un spectre s'étendant jusqu'à quelques dizaines de microns. Du côté des UV et des rayons X, une méthode consiste à produire des harmoniques de rayonnement laser par interaction non linéaire d'un faisceau femtoseconde intense avec des atomes, mais ce dernier point concerne plutôt l'utilisation des laser ultra-intenses.

Effets mésoscopiques

La notion de rapidité est en général liée à celle de localisation et de système mésoscopique. Ceci est particulièrement vrai dans les systèmes électroniques à semi-conducteurs pour lesquels les fronts de tensions peuvent se propager à une vitesse de 100nm/fs. Il est donc crucial d'obtenir simultanément les résolutions spatiales nanométriques et temporelles femtosecondes. Plusieurs méthodes sont envisageables. Les plus prometteuses reposent sur les puissantes techniques de microscopie qui ont été développées ces dernières années, comme les microscopes à effet tunnel ou à force atomique auxquels on peut aussi associer des mesures magnétiques, ou le microscope à champ proche. Leur fonctionnement repose sur l'emploi de pointes (ou d'un trou pour le dernier cas) qui interagit de façon très non linéaire avec le matériau. Le couplage des techniques spatiales et temporelles peut passer par les propriétés de cette pointe. De récentes propositions ont été ainsi faites d'utiliser les propriétés électro-optiques de ces pointes et des matériaux étudiés dans un schéma analogue à celui de l'échantillonnage électro-optique qui fournit déjà des mesures à des précisions subpicosecondes. Nul doute que ces concepts, s'ils sont vérifiés, auront un impact important sur toutes les techniques de nano-électronique, mais aussi pour les processus de transferts de charges dans les systèmes moléculaires. En effet, ces transferts effectifs d'électrons, qui peuvent s'effectuer à une grande vitesse (1nm/ps), pourraient devenir le principe de base d'une électronique moléculaire en pleine gestation, de la même manière qu'ils interviennent de façon fondamentale dans divers processus biologiques.

L'ingénierie photonique

La grande largeur spectrale des impulsions ultra-brèves autorise toutes sortes de manipulations qui ouvrent d'importantes perspectives pour la dissociation sélective et le contrôle dirigé des réactions, comme par exemple la dissociation sélective de molécules, qui est, on le sait, un enjeu important du génie chimique. On peut par exemple exciter un niveau vibrationnel de façon à littéralement "secouer" sélectivement une liaison chimique jusqu'à la casser. Mais si cette molécule peut se dissocier, c'est que son énergie potentielle n'est pas harmonique et l'écart vibrationnel décroît avec l'énergie. Une autre difficulté est la rapide redistribution de l'énergie vibrationnelle. L'utilisation d'une impulsion brève contrecarre le deuxième effet. On peut en outre imposer un glissement de fréquence (chirp) épousant la variation de l'échelle des niveaux vibrationnelles. Ce chirp linéaire est une forme simple du formage d'impulsion. Cette idée, très intéressante dans le domaine moléculaire, vient d'être mise en application avec deux transitions électroniques successives d'atomes de rubidium. Cela montre qu'une procédure systématique ne faisant pas uniquement appel à l'intuition doit être mise en œuvre afin d'optimiser les produits d'une réaction photochimique. Ce principe ne se limite pas à une séquence d'impulsions optiques, ou même à un chirp linéaire comme dans l'exemple précédent. L'idée fondamentale est que l'on peut à l'aide du formage (en amplitude et phase) diriger un système moléculaire vers un arrangement moléculaire, une dissociation facilitée, une rupture préférentielle de liaisons ou la formation préférentielle d'un produit de réaction. Diverses approches peuvent être envisagées, allant du calcul, à partir de la connaissance des potentiels impliqués, du champ optique solution du problème inverse, jusqu'au contrôle optimal et d'un asservissement sur les produits de la réaction. On retrouve, dans ce "contrôle cohérent" de systèmes quantiques, le concept déjà ancien de contrôle moléculaire dans lequel il s'agit de diriger de façon externe l'évolution temporelle d'un système multi-atomique sur une surface de potentiel, en le guidant vers la formation du produit désiré. L'idée du contrôle cohérent repose sur le postulat que la dynamique d'un chaos déterministe (qui domine une réaction en l'absence de champ externe) pourra disparaître au profit d'une dyna-

mique contrainte sur un chemin réactionnel donné. La sensibilité de la méthode aux détails des surfaces de potentiel, généralement mal caractérisées, reste cependant une inconnue. La connaissance de ces surfaces n'est probablement pas requise si des techniques de "feedback" et de contrôle optimal peuvent être mises en œuvre de manière à suivre l'évolution du système et à corriger en temps réel la direction de cette évolution. Ce processus itératif entre théorie, simulation, et expériences constituera une approche absolument unique pour, à la fois, la connaissance et le contrôle de la dynamique des systèmes atomiques et moléculaires, y compris macromoléculaires.

3. 3 IMPULSIONS ULTRA-INTENSES

Une opportunité de faire sauter un important verrou technologique vient d'apparaître de nouveau dans la technologie des lasers femtosecondes lui permettant d'atteindre son point ultime, la science des intensités extrêmes. En effet, il est maintenant clair qu'il est possible, par manipulation de la phase des impulsions, de rallonger celles-ci, de les amplifier puis de les comprimer à leur durée initiale. Cette méthode permet d'extraire toute l'énergie stockée dans les milieux amplificateurs laser en évitant l'apparition prématurée d'effets non linéaires catastrophiques pour les milieux traversés. Le régime des dizaines de terawatts est maintenant atteint par des systèmes reposant en particulier sur le saphir dopé au titane et fonctionnant à cadence élevée, alors que le régime des petawatts ($1 \text{ PW} = 10^{15} \text{ W}$) est obtenu sur les grandes installations à verres.

Les densités de puissance de rayonnement que l'on pourra atteindre avec ces impulsions ultra-brèves seront probablement les plus élevées, auxquelles la matière pourrait être exposée depuis l'origine de l'univers. On en conçoit à la fois des progrès dans la connaissance de l'interaction de la matière avec la lumière, mais aussi des côtés plus appliqués avec des rayonnements secondaires. On note aussi une synergie importante du premier thème avec les projets des grands instruments nécessaires aux objectifs de défense en matière de simulation (laser Mégajoules du CEA).

Sources X et V-UV

Les enjeux concernent à la fois la physique atomique et moléculaire, ainsi que la dynamique structurelle (bords de bandes, EXAFS, ...). L'émission est obtenue par interactions dans un solide ou un gaz. Les impulsions courtes et intenses permettent l'étude d'une nouvelle classe expérimentale de plasmas denses, ceux à gradients raides. Ces plasmas diffèrent des plasmas conventionnels produits par les impulsions longues car ici l'expansion n'a pratiquement pas le temps de se produire pendant l'illumination. Ceci permet de déposer une grande quantité d'énergie dans un milieu, même de densité très supérieure à la densité critique. À la suite de nombreux processus atomiques, l'énergie du laser est alors convertie en radiation, soit sous forme de raies, soit sous forme de fond continu. Le gradient élevé de densité et de température provoque un très rapide refroidissement. Ce sont des conditions idéales pour créer des sources incohérentes de rayonnement X ultra-brefs, mais aussi des conditions favorables à la création d'une inversion de population pouvant conduire à un laser X qui fonctionne suivant un schéma dit "par recombinaison".

Les sources constituées par des plasmas créés par irradiation par laser nanoseconde sont maintenant utilisées de façon courante. De tels systèmes ont été mis au point pour les besoins de gravure en micro-électronique. De même, des démonstrations de microscope à balayage utilisant de telles sources ont été réalisées. Une des régions spectrales d'intérêt pour la biologie est la fenêtre de l'eau entre 23nm et 44nm. Jusqu'à présent, seuls les synchrotrons ont pu être mis en œuvre dans ce domaine spectral. L'utilisation de rayonnements X initiés par impulsions brèves est donc des plus intéressants. Un problème est que l'interaction avec une cible solide, seule capable d'émettre un rayonnement bref, est relativement inefficace à cause de la très grande réflectivité des surfaces. Certes une pré-impulsion augmente l'efficacité de conversion, mais elle crée beaucoup d'électrons rapides qui vont eux-mêmes engendrer des rayonnements X très durs (MeV), peu intéressants et même dommageables pour les applications. Un autre axe de recherche concerne donc le choix des cibles. Ainsi les matériaux poreux qui piègent la lumière semblent être de bien meilleurs émetteurs. Des rendements de 1,5 % ont

été obtenus pour les rayons X au-dessus du keV avec un processus d'absorption s'apparentant à l'absorption résonnante. Des mesures de durée effectuées à l'aide de caméras à balayage de fente ou par méthodes de corrélation montrent que ces rayonnements sont très brefs, de durée inférieure à 1 ps. Les simulations montrent même des émissions de l'ordre de la centaine de femtosecondes. Cette émission pratiquement isotrope nécessite des systèmes de reprise d'image pour pouvoir être transportée jusqu'au lieu d'expérience. Dans la région des X mous, on peut utiliser des optiques de focalisation du type Schwarzschild et des miroirs à couche multidélectrique dont la réflectivité est cependant très pointue en longueur d'onde. On peut aussi parfaitement envisager que de telles sources puissent servir de faisceaux sonde pour des expériences résolues en temps.

De même, on peut imaginer des schémas de lasers X produits par ionisation par effet de champ ouvrant une perspective de rayonnement partiellement cohérent à l'aide des impulsions ultra-brèves. Dans ce schéma, qui n'a pas encore été réellement démontré expérimentalement, un plasma est initialement ionisé à l'aide d'une impulsion laser ultra-puissante. Pendant la période où ce plasma est hors de l'équilibre d'ionisation et la température des électrons suffisamment faible, un processus de recombinaison à trois corps très rapide peut se produire, conduisant à une inversion de population totale. Cette possibilité de gain subsiste durant la durée de vie de l'état lasant. Ce schéma est prévu pour produire une inversion de population entre un état excité et l'état fondamental, ce qui est très avantageux en terme de longueur d'onde émise.

Il faut aussi mentionner les grands progrès réalisés ces dernières années dans la génération de rayonnements VUV et X mous cohérents par harmoniques dans les gaz et surtout la compréhension de certains mécanismes sous-jacents. Il est connu depuis longtemps que l'interaction d'un laser avec un gaz atomique conduit à la génération d'harmoniques d'ordre impair. Dans la théorie perturbative, on s'attend à ce que les ordres décroissent rapidement mais à ce que, plus les impulsions sont courtes et intenses, plus de hautes fréquences sont engendrées. Il est remarquable que, si ce dernier point est vérifié, il n'en va pas de même du pre-

mier. La distribution des harmoniques présente un plateau qui s'étend jusqu'à une fréquence de coupure. Le régime ultra-bref est fondamental en ce que la probabilité d'ionisation est d'autant plus réduite que les impulsions sont courtes. Or, le mécanisme d'ionisation transforme les atomes qui émettent des harmoniques en des ions qui émettent beaucoup moins. Les meilleurs résultats sont obtenus en régime femtoseconde et les impulsions les plus courtes possibles avec la génération d'harmoniques jusqu'à environ 7nm. Ce rayonnement présente des propriétés qui le rendent déjà très attractif pour les expériences. L'émission est relativement cohérente, donc facilement transportable et focalisable, et se présente sous forme de raies que l'on peut accorder assez finement. La question fondamentale pour les applications est cependant la possibilité de pousser les fréquences émises vers la fenêtre de l'eau. Deux directions de recherche peuvent être envisagées. La première consisterait à raccourcir les durées d'impulsion jusqu'à une dizaine de femtosecondes. Dans ce cas, on devrait gagner un facteur équivalent sur la fréquence de coupure. Une deuxième voie consisterait à faire émettre non des atomes, mais des ions. Certes leur hyperpolarisabilité est plus petite que celle des atomes, mais comme ils ont déjà perdu beaucoup de leurs électrons, on pourrait pousser l'intensité du laser. De nombreuses recherches sont aussi à mener sur le degré de cohérence de ces rayonnements et sur la meilleure façon de les caractériser et de les utiliser.

Interaction avec les électrons libres :
de la génération d'X à l'accélération de particules

Hormis les électrons liés des atomes et ceux tout aussi liés d'un plasma, les électrons libres sont aussi un matériau de choix pour l'optique non linéaire. Le couplage des lasers et des accélérateurs, accélérateurs linéaires ou synchrotron apparaît prometteur, un exemple étant l'utilisation de la diffusion Compton de la lumière intense émise par un laser ultra-bref par une impulsion d'électrons relativistes, pour créer des impulsions de rayonnement X dur et (1-100 keV), qui ont, suivant les géométries, une durée comprise entre 200-300 femtosecondes et quelques picosecondes. D'autres types de configurations permettant d'amplifier des émissions X mous ultra-brèves, de quelques dizaines de femtosecondes, peuvent aussi être mises en œuvre,

consistant par exemple à utiliser un onduleur en amplificateur d'harmoniques. Certains schémas reposant sur des impulsions à dérive de fréquence et des techniques de compression peuvent même laisser espérer des durées subfemtoseconde ! Ces méthodes s'apparentent au processus inverse de celui du sillage par impulsions optiques ultra-brèves et qui mène à l'accélération de particules chargées par la lumière.

3. 4 PROPAGATION ET PHÉNOMÈNES DYNAMIQUES

Les interactions entre optique et dynamique non linéaire se sont largement développées ces dernières années. Les efforts ont porté initialement sur les configurations en cavités ou avec boucles de rétroaction, avec des études sur le contrôle du chaos des oscillateurs optiques, l'analyse des structures transverses des faisceaux lumineux et la caractérisation des instabilités spatio-temporelles. Ces recherches restent d'actualité, un objectif majeur étant le contrôle des structures spatiales. Les cavités avec amplificateurs reposant sur des non linéarités non résonnantes, tels les OPO, ont un enjeu industriel mais révèlent une dynamique spatio-temporelle complexe et mal contrôlée.

L'étude de la propagation libre de faisceaux intenses a mis en évidence des phénomènes complexes avec des propagations en filaments sur de longues distances, attribuées dans certaines expériences à des effets relativistes. La modélisation, qui repose sur des équations de Schrödinger non linéaires comme pour les solitons dans les guides, implique cependant l'introduction d'effets répulsifs afin d'éviter l'autofocalisation catastrophique des faisceaux qui n'est pas observée. Ce type d'effets se retrouve aussi dans les condensats de Bose d'atomes froids ou d'exitons. Il s'agit d'un domaine d'interactions fructueuses entre physiciens et mathématiciens.

La problématique de la propagation de la lumière dans les milieux aléatoires se révèle elle aussi très riche. En effet, le sujet de la diffusion multiple des ondes est en plein essor, avec de nombreuses applications. Avant les années 60, on consi-

dérait que les diffusions multiples moyennaient les phases et faisaient disparaître les phénomènes d'interférence. Le tournant a été l'article paru en 1958 où Anderson montrait, pour la première fois, que les interférences dans la diffusion multiple d'électrons étaient responsables d'effets dits de *localisation* et que la constante de diffusion de l'onde pouvait s'annuler. Cette découverte a eu d'importantes répercussions en physique des solides. Elle s'applique maintenant à de nombreuses catégories d'ondes dont, évidemment, la lumière. Des effets de localisation faible ont été mis en évidence ainsi que d'autres effets analogues à ceux rencontrés en électronique comme l'effet Hall optique. On note désormais une convergence des concepts sur la diffusion multiple entre des domaines aussi différents que l'acoustique, la photonique, les lidars, la sismologie et récemment les atomes ultra-froids et les condensats de Bose-Einstein. Les problèmes inverses relatifs à ces questions se révèlent des plus importants. Des démonstrations convaincantes d'imagerie médicale ont été ainsi réalisées en régime dit cohérent, et d'autres approches reposant sur l'utilisation d'impulsions brèves et l'échantillonnage des photons directs sont aussi explorées.

3. 5 MÉTROLOGIE DES FRÉQUENCES

On peut s'attendre à des développements intéressants dans ce domaine, aussi bien dans le domaine microonde que dans les domaines infrarouge moyen ou optique.

Horloge à césium

Au cours des dernières années, il est apparu que les atomes refroidis par laser permettaient d'espérer un gain d'un facteur 100 sur la précision des horloges à césium "en fontaine", et encore davantage en microgravité. Un facteur 10 est d'ores et déjà acquis. De longues études d'optimisation, de reproductibilité et d'exactitude sont encore à mener. L'objectif est d'atteindre une stabilité de 10^{-16} par jour. Les équipes françaises occupent une place en pointe dans ce domaine.

Fréquences optiques

Les quatre dernières années ont vu une évolution notable de la situation expérimentale concernant la mesure des fréquences optiques. En 1992, une seule fréquence avait été mesurée une seule fois en 1983 par Hall (dont le résultat s'est d'ailleurs révélé inexact par suite d'une erreur matérielle dans le dépouillement des nombreuses étapes conduisant de l'horloge à césium au laser hélium-néon rouge).

Depuis 1992, plusieurs fréquences optiques ont été remesurées au LPTF, à Munich et au PTB, à partir du laser CO_2 . On peut noter qu'existe dans ce dernier laboratoire une chaîne de fréquences reliant en permanence un laser CO_2 à l'horloge à césium, alors qu'en France cette chaîne n'existe que de façon transitoire. Une simplification de la chaîne est d'ailleurs planifiée, bénéficiant des progrès dans le domaine des sources laser, des détecteurs et des matériaux non linéaires.

Le défi actuel est d'avoir un étalon de fréquence dans le visible, la reproductibilité actuelle des lasers visibles étant nettement inférieure à celle des horloges microondes. Deux candidats existent : diode laser stabilisée sur le rubidium, et YAG doublé stabilisé sur l'iode. À plus long terme, les ions piégés ou des atomes neutres refroidis (Ca, Mg, H) pourront venir en concurrence. L'enjeu est la réalisation d'horloges permettant d'atteindre une meilleure précision sur un temps plus court.

Les compétences existent en France pour progresser dans ces deux domaines au cours des années à venir. La communauté du domaine doit être soutenue et organisée conjointement avec le Département SPI. Des mesures de nature plus fondamentale pourront être éventuellement effectuées avec des horloges de stabilité meilleure que 10^{-16} /jour, par exemple la stabilité dans le temps des constantes fondamentales.

4 - LES INTERFACES DE LA SPECTROSCOPIE MOLÉCULAIRE

De nombreux développements récents en spectroscopie moléculaire se situent aux interfaces avec d'autres disciplines telles que l'astrophysique, la chimie ou l'étude de l'atmosphère, qui mettent à profit ce puissant moyen d'investigation des propriétés physico-chimiques des molécules et de leur environnement. Cependant ces retombées "appliquées" ont souvent été elles-mêmes à la source de développements fondamentaux importants. On peut rappeler à ce propos que la découverte des fullerènes est une conséquence directe d'études menées en vue d'élucider un problème de spectroscopie en astrophysique. Malgré son grand âge, la spectroscopie moléculaire apparaît donc toujours comme une discipline particulièrement dynamique. Nombre d'espèces et de processus intervenant dans la chimie interstellaire, planétaire, atmosphérique, dans les plasmas et dans les flammes sont en effet souvent "exotiques" et posent de passionnants problèmes expérimentaux et théoriques de physico-chimie et/ou de dynamique intra- et inter-moléculaire.

Ces dernières années ont été marquées par un développement constant des techniques expérimentales visant à pousser vers leurs limites ultimes la sensibilité et la résolution des différentes méthodes spectroscopiques. À côté de techniques déjà bien rodées (spectroscopie par transformée de Fourier en infrarouge, spectroscopie impulsionnelle, spectroscopie cohérente à haute ou très haute résolution de l'ultraviolet au centimétrique, spectroscopie photoacoustique intra- ou extra-cavité laser, fluorescence induite par laser), des méthodes plus récentes (IntraCavity LAsER Spectroscopy (ICLAS), Ring Down Cavity Spectroscopy (RDCS), Degenerate ForWard Mixing (DFWM), Stimulated Emission Pumping (SEP), Resonance Enhanced MultiPhoton Ionisation (REMPI), Pulsed Field Ionisation and ZERo Kinetic Energy Spectroscopy (PFI-ZEKE), etc.) se sont développées et ont été appliquées à des problèmes de physico-chimie moléculaire. Couplées à des jets supersoniques, à des pièges à ions et à des dispositifs d'ablation et

de photolyse laser, elles ont conduit à la détection et à la caractérisation d'espèces nouvelles très peu abondantes et/ou très réactives. On notera en particulier un intérêt croissant pour l'étude d'édifices moléculaires complexes tels que les molécules biologiques et les agrégats neutres ou ionisés (cf. *supra*). Couplés à des avancées théoriques dans les domaines de la chimie quantique et des interactions à plusieurs corps, ces travaux ont conduit à une meilleure compréhension de la structure et des mouvements de grande amplitude des molécules flexibles, à la détermination des potentiels intramoléculaires, et ont permis de préciser les flux d'énergie à l'intérieur des molécules et des agrégats et de caractériser de nouveaux processus réactifs élémentaires.

La matière interstellaire, circumstellaire et interplanétaire se trouve sous des formes extrêmement variées qui vont des molécules, radicaux et ions à très petit nombre d'atomes, jusqu'aux grains submicroniques. L'identification des porteurs de bandes et de raies dans tout le domaine électromagnétique reste donc un objectif fondamental. Même si la moisson de nouvelles molécules interstellaires s'est ralentie ces dernières années, les espèces récemment détectées (agrégats de carbone, molécules contenant des métaux) sont particulièrement intéressantes et ont stimulé de nombreux travaux de laboratoire, du domaine millimétrique à l'infrarouge. L'accès à de nouvelles fenêtres d'observation grâce au développement de nouveaux instruments au sol ou embarqués (ISO, PRONAOS, FIRST, ODIN, HUBBLE, ...) est également une motivation puissante pour étendre la gamme des études de laboratoire, notamment à la région allant du submillimétrique à l'infrarouge lointain. De nombreuses études expérimentales sont également consacrées aux propriétés des molécules aromatiques polycycliques (PAH), susceptibles d'être responsables des bandes infrarouges non identifiées (UIB). D'importants résultats de chimie quantique ont par ailleurs permis de mieux caractériser les PAH déshydrogénés et ionisés pour lesquels il n'existe encore que peu de résultats expérimentaux. L'hypothèse des "poussières charbonnées" comme modèle de grains interstellaires a donné également des résultats très encourageants pour l'interprétation des spectres infrarouges. De même, dans le domaine visible, l'identification des bandes

interstellaires diffuses (DIB), en attente depuis plus de cinquante ans, fait l'objet d'études expérimentales et théoriques particulièrement actives portant sur les caractéristiques spectroscopiques des grosses molécules telles que les PAH neutres ou ionisés et les longues chaînes carbonées, en phase gazeuse ou en matrice. La spectroscopie moléculaire est aussi une méthode de choix pour étudier les interactions molécules-grains. Les études portent sur les mécanismes fondamentaux de l'adsorption, de la désorption et de la nucléation, ainsi que sur la caractérisation des agrégats et des processus réactifs intervenant à la surface de grains interstellaires modèles.

L'interprétation des données observationnelles relatives aux *atmosphères terrestres et planétaires* et la fiabilité de la modélisation de leur structure et de leur évolution physico-chimique (effet de serre) sont largement tributaires de la qualité des données spectroscopiques disponibles. L'observation de transitions rovibrationnelles permet en effet d'identifier les composés minoritaires, de déterminer leur concentration et d'analyser les processus physico-chimiques à l'œuvre dans les atmosphères planétaires. Un très important travail de mesures de la position, de l'intensité, du profil des raies et des continus, ainsi que leur dépendance en température, est en cours sur l'ensemble des espèces moléculaires impliquées dans les processus atmosphériques. La qualité de ces résultats expérimentaux conditionne directement la précision obtenue sur les paramètres atmosphériques et notamment sur les profils de température, de pression et de concentration. Ces résultats alimentent des bases de données (HITRAN, GEISA, ...), qui apparaissent de plus en plus comme des outils incontournables dans l'étude physico-chimique des atmosphères, qu'elles soient ou non à l'équilibre thermodynamique. Dans le domaine de la *planétologie*, on notera le développement des observations spectroscopiques à haute résolution, à partir du sol ou de satellites, notamment dans les régions millimétriques, submillimétriques et infrarouges qui sont, en attendant des mesures *in situ*, des domaines privilégiés pour l'étude des atmosphères planétaires. En liaison étroite avec des études spectroscopiques de laboratoire, de nombreuses espèces minoritaires ont été détectées dans les comètes, les planètes géantes et leurs satellites (Io,

Titan), et l'étude des processus auroraux a été abordée en couplant observations IR et UV. La compréhension de la nature et des conditions physiques des surfaces satellitaires et des noyaux cométaires a également progressé grâce à l'étude spectroscopique des glaces. La possibilité, inhérente à la spectroscopie, de télédétection de plusieurs composés est également mise à profit dans l'analyse de la composition chimique et de la variabilité de la *troposphère* et de la *stratosphère terrestres*. Des réseaux d'observation des espèces susceptibles d'intervenir dans les processus atmosphériques ont été mis en place et utilisent tout l'éventail des techniques spectroscopiques : LIDAR, DOAS dans les domaines UV, visible et IR, spectrométrie IR à transformée de Fourier, sondes millimétriques, etc. Des lidars Doppler et Raman sont utilisés pour l'étude de la dynamique et des profils de température de l'atmosphère. La mise au point de nouveaux lidars travaillant dans des gammes de sécurité oculaire (rendue possible par l'apparition de nouveaux lasers à l'état solide) nécessite de compléter les bases de données dans le proche infrarouge. Au travail fondamental de collecte de données spectroscopiques, difficile car les espèces intéressantes sont souvent réactives, il faut ajouter des travaux expérimentaux et théoriques portant sur les processus d'interactions collisionnelles qui gouvernent l'absorption dans les ailes de raies, le recouvrement et le couplage des raies et les continus d'absorption.

Les méthodes spectroscopiques sont également très utilisées dans l'étude des systèmes présentant de fortes hétérogénéités de pression, de température et de composition, notamment en *aéronomie*, en *physico-chimie des plasmas* et en *combustion* (aérothermochimie des flammes turbulentes, moteurs). La fluorescence induite par laser (LIF) et la spectroscopie Raman cohérente (CARS) permettent maintenant d'étudier les propriétés physiques et chimiques des milieux réactifs avec une excellente résolution spatiale et temporelle. Les techniques d'imagerie utilisant plusieurs faisceaux colinéaires et synchrones commencent à fournir des cartographies instantanées de température et de concentrations de plusieurs espèces intermédiaires et permettent d'aborder le problème de la formation des suies. Les sources laser à excimères ont redonné récemment un essor aux techniques

Raman et LIF. En particulier, l'accès à des niveaux pré-dissociés rend les mesures LIF peu sensibles aux collisions et donc exploitables quantitativement à haute pression. La technique de mélange à quatre ondes (DFWM), caractérisée par une bonne sensibilité, est utilisée dans des environnements très lumineux. Les travaux en cours visent à une

meilleure compréhension théorique des processus en jeu, de façon à rendre cette méthode quantitative. La technique de la photoionisation par laser (REMPI) permet d'accéder à des molécules non fluorescentes. Elle est également employée pour la détection ultra-sensible de gros hydrocarbures, notamment les hydrocarbures chlorés.