

50376  
1969  
23

50376  
1969  
23

# THÈSE

présentée

à la Faculté des Sciences de l'Université de Lille

pour obtenir

le titre de Docteur Troisième Cycle

(Chimie Structurale)

par

ALAIN VANHOUTTE



## Etude d'un Laser à argon ionisé en impulsions

Emploi en Spectroscopie Raman



Thèse soutenue le 28 Mars 1969 devant la Commission d'Examen

MM. J. HEUBEL,                   Président  
      F. MONTARIOL,            }  
      M. DELHAYE,               } Examineurs

- . UNIVERSITE DE LILLE - FACULTE DES SCIENCES . -  
-----

- . Doyens Honoraires . -  
-----

MM. H. Lefebvre  
M. Parreau

- . Professeurs Honoraires . -  
-----

MM. Arnoult	MM. Fleury	MM. Pariselle
Beghin	Germain	Pascal
Cau	Kourganoff	Pauthenier
Chapelon	Lamotte	Roig
Chaudron	Lelong	Roseau
Cordonnier	Mme. Lelong	Roubine
Deheuvels	MM. Mazet	Wiemann
Dehorne	Michel	Zamansky
Dolle	Normant	Kampe de Feriet

- . Doyen . -  
-----

R. Defretin, Professeur Biologie et Physiologie  
Animales

- . Assesseurs . -  
-----

MM. Heubel	Professeur de Chimie Minérale
Lebrun	Professeur d'Electronique, Electro- technique et Automatique.

- . Professeurs . -  
-----

MM. Bacchus	Astronomie et Calcul Numérique.
Beaufils	Catalyse.
Bonneman	Chimie Analytique Industrielle.
Becart	Spectroscopie Moléculaire.
Bloch	Phychophysiologie
Bonte	Géologie Appliquée.
Boughon	Mathématiques.
Bouisset	Physiologie Générale.
Bouriquet	Physiologie Végétale.
Celet	Géologie Dynamique.
Constant	Hyperfréquences et semi-conducteurs.
Corsin	Palynologie. Paléontologie Végétale.
Decuyper	Mathématiques.
Dedecker	Mathématiques.
Defretin	Biologie Marine.
Dehors	Automatique et Calcul Analogique.
Delattre	Géologie Régionale.
Deleau	Sédimentologie.

MM.	Delhaye	Spectroscopie Raman.
	Descombees	Mathématiques.
	Durchon	Endocrinologie des Invertébrés.
	Fouret	Physique des Solides Rayons X.
	Gabillard	Géopropagation et Résonances Magnétiques.
	Glacet	Chimie Organique I.
	Gontier	Mécanique des Fluides.
	Heim de Balsac	Ecologie des Vertébrés.
	Heubel	Chimie Minérale I.
	Hocquette	Botanique.
	Lebrun	Spectrométrie des Liquides et Mesures Automatiques.
Mle	Lenoble	Optique Atmosphérique.
MM.	Linder	Cytogénétique.
	Lucquin	Chimie de la Combustion.
	Marion	Chimie.
	Martinot-Lagarde	Mécanique des Fluides.
Mle	Marquet	Mathématiques.
MM.	Montariol	Métallurgie.
	Montreuil	Physico-Chimie Biologique.
	Moriamez	Physique des Ultra-Sons.
	Mouvier	Chimie.
	Parreau	Mathématiques.
	Perez	Mécanique des Cristaux.
	Pham Mau Quan	Mathématiques.
	Prouvost	Minéralogie.
	Savard	Catalyse.
	Schiltz	Spectroscopie Générale.
	Schaller	Entomologie
Mme	Schwartz	Mathématiques.

MM. Tillieu	Physique Théorique.
Tridot	Chimie Minérale Appliquée.
Vidal	E.E.A.
Dercourt	Sciences de la Terre.
Vivier	Prostitologie et Microscopie Electronique.
Waterlot	Géologie Stratigraphique.
Wertheimer	Spectroscopie hertzienne et Electronique quantique.
Vaillant	Mathématiques Pures.

- . Maîtres de Conférences . -

=====

MM. Aubin	Mathématiques Pures.
Beghin	Mécanique des Fluides.
Bellet	Spectroscopie hertzienne et Electronique quantique.
Benabou	Mathématiques.
Billard	Stases Amisotropes.
Boillet	Spectroscopie Infra Rouge.
Bui Trong Lieu	Mathématiques.
Caporon	Biologie Animale.
Cherruault	Mathématiques.
Carrez	Calcul Numérique.
Cortois	Physique.
Devrainne	Chimie Minérale II.
Mme Dran	Chimie Organique II.
MM. Goudmand	Photochimie.
Guilbault	Physiologie Comparée.
Guillaume	Microbiologie.
Huard de La Mapre	Calcul Numérique.

Joly	Endocrinologie des Arthropodes.
Lablache-Combier	Chimie Organique Physique.
Lacoste	Cryptogamie.
Landais	Chimie Organique II.
Laurent	Mathématiques.
Lehmann	Mathématiques.
Mme Lehmann	Mathématiques.
MM. Loucheux	Chimie Macromoléculaire.
Maes	Spectroscopie hertzienne et Electronique quantique.
Monsigny	Chimie Biologique.
Montel	Optique des Rayons X.
Panet	Electrotechnique.
Parsy	Mathématiques.
Ponsolle	Chimie.
Raczy	Hyperfréquences et semi-conducteurs.
Robert	Calcul Numérique.
Saada	Défauts dans les cristaux.
Salmer	Radioélectricité et Electronique.
Mme Zinn-Justin	Mathématiques.

Ce travail a été réalisé sous la direction de Monsieur DELHAYE, Professeur à la FACULTE des SCIENCES de LILLE. Qu'il me soit permis de lui exprimer toute ma reconnaissance pour ses nombreux encouragements et sa bienveillante attention.

Je remercie Monsieur BRIDOUX et Madame CRUNELLE pour les précieux conseils qu'ils m'ont donnés, ainsi que le personnel technique du laboratoire pour sa grande disponibilité.

Je remercie Messieurs les Professeurs HEUBEL et MONTARIOL qui ont bien voulu accepter de faire partie du Jury.

## I - Introduction

Les lasers, objets de recherches intensives depuis 1960 en vue de nombreuses applications physiques, se sont révélés être en particulier des sources de lumière très bien adaptées à la spectroscopie Raman.

L'objet de ce travail est de réaliser un montage permettant d'exciter l'effet laser en impulsions dans les gaz rares. L'intérêt réside dans le grand choix des raies et l'intensité instantanée élevée que l'on peut espérer obtenir dans le fonctionnement en impulsions.

Les gaz offrent, en effet, des possibilités intéressantes comme "matériaux lasers" , car leurs atomes peuvent être excités de diverses façons. L'excitation optique comme dans le cas du laser à Rubis n'est pas très efficace ; on utilise de préférence un procédé de collision par bombardement électronique dans une décharge, ce qui provoque une inversion de population entre certains niveaux d'énergie d'ions ou d'atomes neutres. C'est une méthode qui a été utilisée pour le Néon pur, l'Argon, le Krypton et le Xénon. Une autre méthode consiste à utiliser un mélange de gaz car en plus de l'excitation par bombardement électronique, il y a transfert d'excitation entre les atomes ou ions qui entrent en collision.

Le présent mémoire décrit le travail réalisé qui a porté sur les techniques du vide, les tubes à décharges, l'alimentation en haute tension de ceux-ci ainsi que sur les circuits de déclenchement . Nous considérerons enfin les résultats obtenus et leurs applications dans le cadre de la spectroscopie Raman.

## II - Principe du Laser à Gaz

### - Phénomène d'absorption et d'émission

Considérons un atome qui est un système quantifié, il se compose d'un noyau et d'électrons dont l'énergie ne peut prendre que certaines valeurs.(1) Chaque fois qu'un électron change d'état énergétique, il absorbe ou émet un photon ou quantum d'énergie. Chaque état est représenté par un niveau d'énergie. Dans cette description élémentaire supposons que l'atome possède deux niveaux d'énergie  $E_1$  et  $E_2$  et considérons  $N$  systèmes du type précédent. A un instant  $t$ ,  $n_1$  se trouvent dans l'état d'énergie  $E_1$  et  $n_2$  dans l'état  $E_2$ , il est évident que  $n_1 + n_2 = N$ . Tous ces systèmes sont contenus dans un volume à parois opaques pour les photons, que l'on appelle cavité. Les photons qui ont une énergie  $W = h\nu = E_2 - E_1$  permettent la transition entre les deux états énergétiques.

Soit  $n$  le nombre de ces photons, à l'instant  $t$ ; si le volume de la cavité est  $V$ , la densité d'énergie électromagnétique emmagasinée dans la cavité est alors :

$$U = \frac{n h \nu}{V}$$

Pendant l'unité de temps, certains des systèmes dans l'état  $E_2$  vont "tomber" sur l'état  $E_1$  et par conséquent émettront un photon; réciproquement certains des systèmes dans l'état d'énergie  $E_1$  vont absorber un des photons de la cavité et monter sur le niveau  $E_2$ . Il est alors possible de faire le bilan de ces échanges entre la matière et le rayonnement :

- l'Emission qui va faire croître le nombre des photons sera proportionnelle au nombre de systèmes qui peuvent émettre, c'est-à-dire à  $n_2$ .

- l'Absorption qui va faire décroître le nombre de photons sera proportionnelle au nombre de systèmes qui peuvent absorber, ainsi qu'au nombre de photons qui peuvent être absorbés, nous aurons donc une absorption proportionnelle à  $n n_1$  ou encore à  $U n_1$ .

L'équation cinétique donnant la variation de la densité d'énergie électromagnétique  $U$  en fonction du temps est :

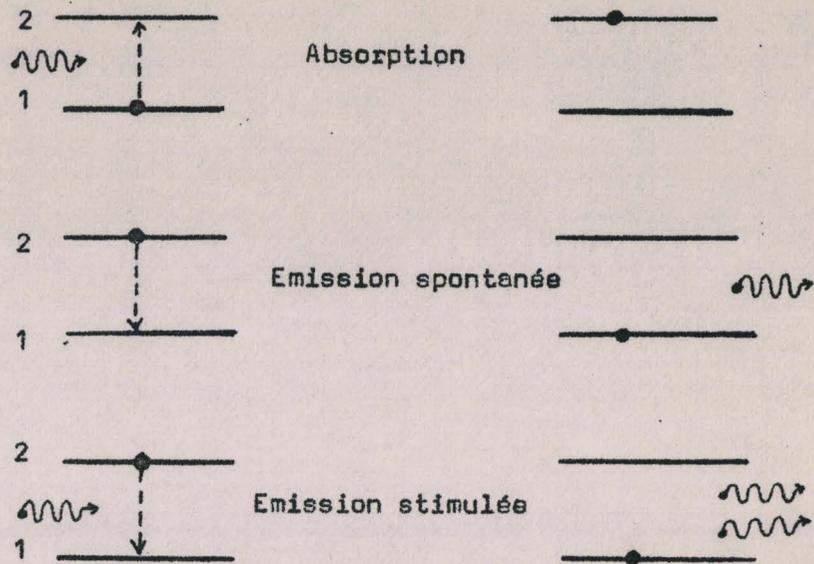
$$\frac{dU}{dt} = a n_2 - b U n_1$$

Les conséquences d'une telle équation ne sont pas satisfaisantes si on suppose  $a$  et  $b$  constantes.

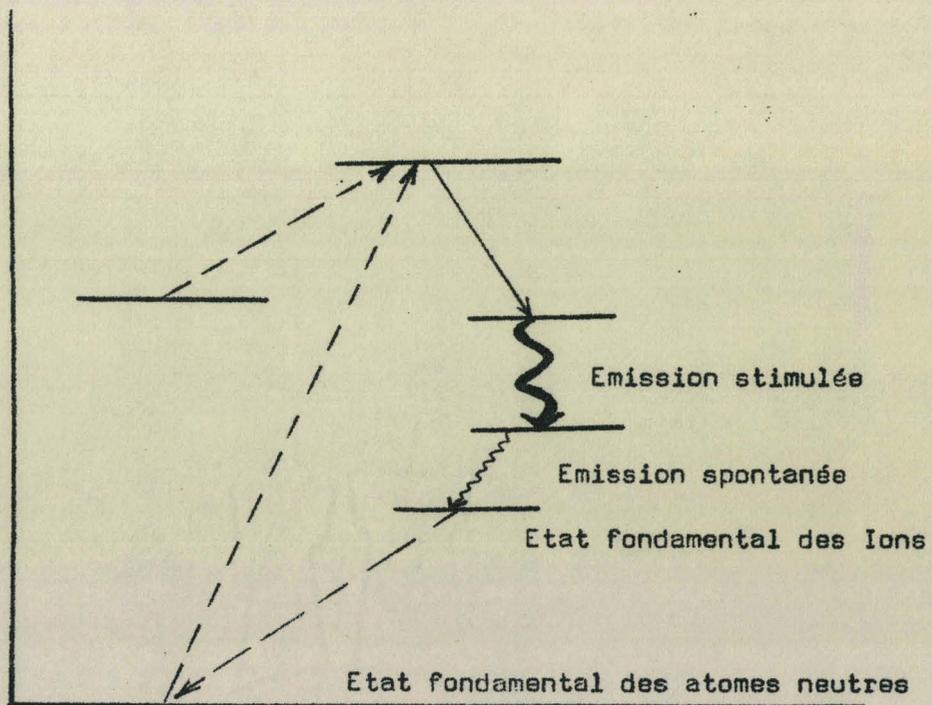
Tout se passe comme si le coefficient d'émission  $a$  était d'autant plus grand que le nombre des photons dans la cavité était plus grand. On rend compte de ce processus d'émission en le considérant sous deux aspects :

a) émission spontanée : un système dans l'état  $E_2$  descend sur l'état  $E_1$ , indépendamment d'aucun facteur extérieur. L'intensité de ce phénomène dépend essentiellement de la population  $n_2$  du niveau  $E_2$ , c'est un phénomène purement aléatoire.

b) émission stimulée : processus introduit par EINSTEIN pour rendre compte du fait que l'émission augmente avec le nombre de photons que contient la cavité. Lorsqu'un système à l'état  $E_2$  est frappé par un photon, il descend sur le niveau  $E_1$  en émettant un second photon. Il s'agit d'une "résonance". C'est cette émission forcée qui est appelée émission induite ou stimulée. Ce phénomène est proportionnel au nombre de photons et à la population du niveau  $E_2$ , donc au produit  $n n_2$  ou, ce qui revient au même, à  $U n_2$ .



- INTERACTION PHOTON-ELECTRON. ( fig.1 ) (1)



-LASER IONIQUE. ( fig. 2 )



La nouvelle équation cinétique est alors :

$$\frac{dU}{dt} = a n_2 + b U n_2 - b U n_1$$

dont les conséquences sont vérifiées par l'expérience.

On peut démontrer que les coefficients  $a$  et  $b$  d'absorption et d'émission stimulés sont égaux.

Schéma d'Absorption et d'Emission (fig. I).

### III - Répartition des Systèmes dans les niveaux d'énergie

Si nous revenons au modèle quantifié précédent, nous avons  $N$  systèmes que nous pouvons répartir entre les niveaux  $E_1$  et  $E_2$ . Les populations  $n_1$  et  $n_2$  vont varier au cours du temps, mais sans envisager la cinétique des photons, il importe d'examiner l'état d'équilibre :

$$\frac{dU}{dt} = 0 \quad \frac{dn_1}{dt} = 0 \quad \frac{dn_2}{dt} = 0$$

étant entendu qu'il s'agit d'un équilibre statistique, (il y a autant de systèmes qui montent de  $E_1$  sur  $E_2$  que de systèmes qui descendent sur  $E_1$  par unité de temps). Dans ce cas, Boltzmann a montré que l'on avait la relation :

$$\frac{n_2}{n_1} = e^{-\frac{E_2 - E_1}{k T}} = e^{-\frac{h\nu}{kT}}$$

$\left. \begin{array}{l} k = \text{constante de Boltzmann} \\ T = \text{température absolue} \end{array} \right\}$

Selon cette loi, plus le niveau  $E_2$  est élevé, moins il y aura de chance que ce niveau soit occupé. En fournissant aux électrons une énergie supplémentaire, on modifie la répartition d'équilibre thermodynamique : le système devient instable et tend à revenir à son état d'équilibre en émettant de la lumière, c'est-à-dire que les électrons ainsi "excités" reviennent à un état plus stable en émettant-des photons.

Supposons que la distribution de population soit telle que  $N_2 > N_1$ , un photon de fréquence  $\nu = \frac{E_2 - E_1}{h}$  aura une plus grande probabilité de provoquer l'émission d'un autre photon que d'être absorbé.

Le photon émis provoque à son tour d'autres émissions. Une avalanche de photons de même fréquence, même phase, même direction et même polarisation peut ainsi se produire. Pour augmenter l'émission stimulée par rapport à l'émission spontanée, l'inversion de population doit être suffisamment grande. Divers procédés ont été employés à cette fin qui consistent à altérer fondamentalement la situation d'équilibre.

#### IV - I n v e r s i o n   d e   P o p u l a t i o n

Pour provoquer l'inversion de population décrite ci-dessus, le processus dit à plusieurs niveaux est parmi les plus employés.

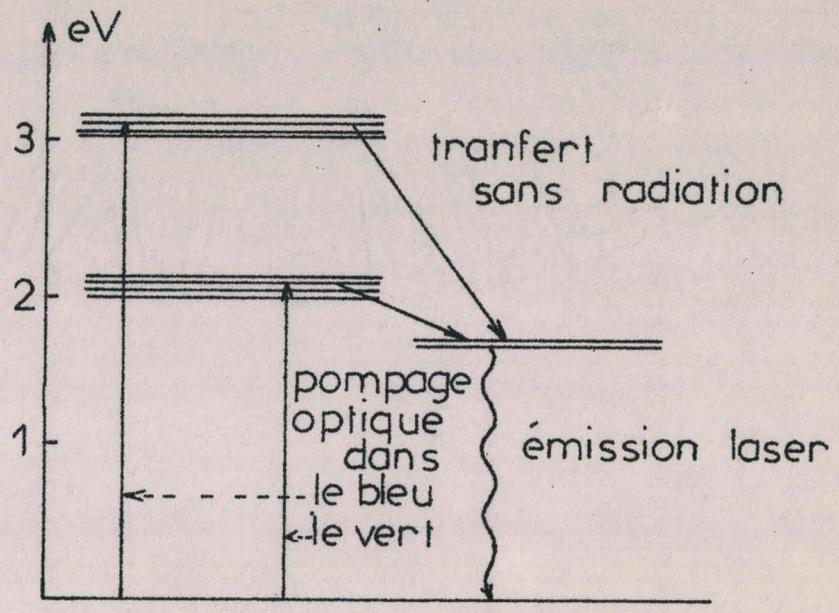
Considérons un système qui peut être dans trois états énergétiques 1,2,3, par énergie croissante. Si on illumine cet ensemble avec un rayonnement de fréquence  $\nu_{31} = \frac{E_3 - E_1}{h}$ , aussi grande que soit la densité de rayonnement, on ne peut espérer que la population de l'état 3 devienne plus nombreuse que celle de l'état 1.

Toutefois l'existence du niveau intermédiaire 2 permet l'inversion. En effet, parmi les particules au niveau 3, un certain nombre va redescendre directement au niveau I, mais d'autres vont passer par le niveau intermédiaire 2 avant de retourner à l'état fondamental. Si le niveau 2 se remplit de particules venant de 3 plus vite qu'il ne se vide en I, on conçoit la possibilité d'une accumulation de particules au niveau 2 et par conséquent d'une inversion de la population du niveau 2 par rapport au niveau I. La condition pour obtenir ce résultat est que la durée de vie des particules au niveau 3 soit bien inférieure à la durée de vie des particules au niveau 2. On conçoit qu'un tel schéma de fonctionnement peut faire intervenir plusieurs niveaux intermédiaires.

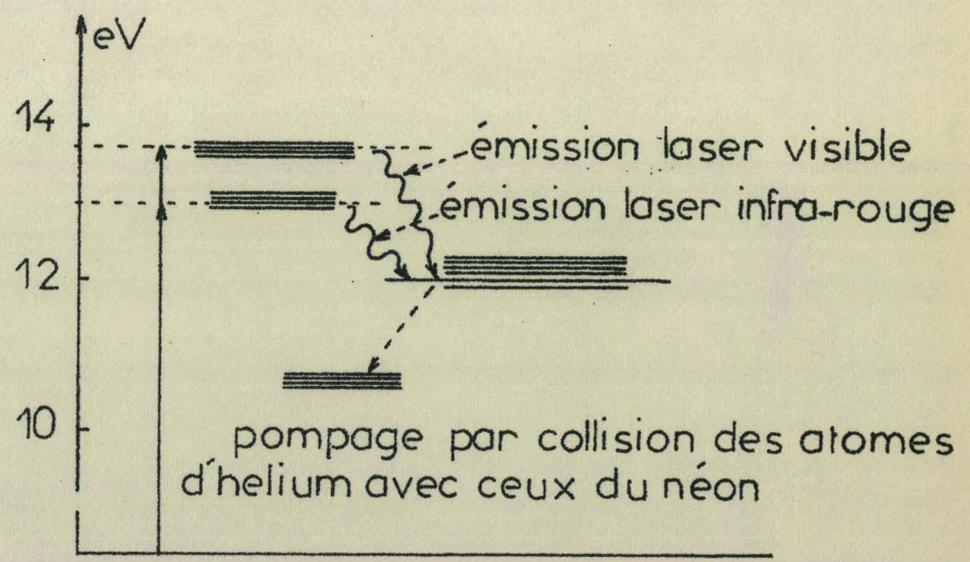
Exemple : Le laser à Rubis est un exemple de laser à 3 niveaux. Le pompage optique permet de passer de l'état I à l'état 3. Le rayonnement stimulé correspond au passage du niveau 2 au niveau I. Le laser à He - Ne : le niveau de retour n'est pas le niveau fondamental. La réalisation de l'inversion de population dépend donc de la vitesse d'excitation et des vitesses de dépopulation par le processus de cascades. Il faut se rappeler qu'un niveau peut se dépeupler soit par processus radiatif, soit par collision entre atomes et électrons ou entre atomes, c'est notamment le cas de désexcitation par les parois du tube contenant le gaz. (Fig. 3)

## V - Lasers Ioniques

C'est en 1964 qu'ont été mis au point les premiers lasers ioniques. L'atome possède plusieurs spectres selon le degré d'excitation apporté. S'il n'est que faiblement perturbé, il émet de la lumière composée du spectre de l'atome neutre. Si on l'excite plus fortement, cet atome perdra un électron.



- Niveaux énergétiques dans le laser à rubis



- Niveaux d'énergie dans le laser He-Ne

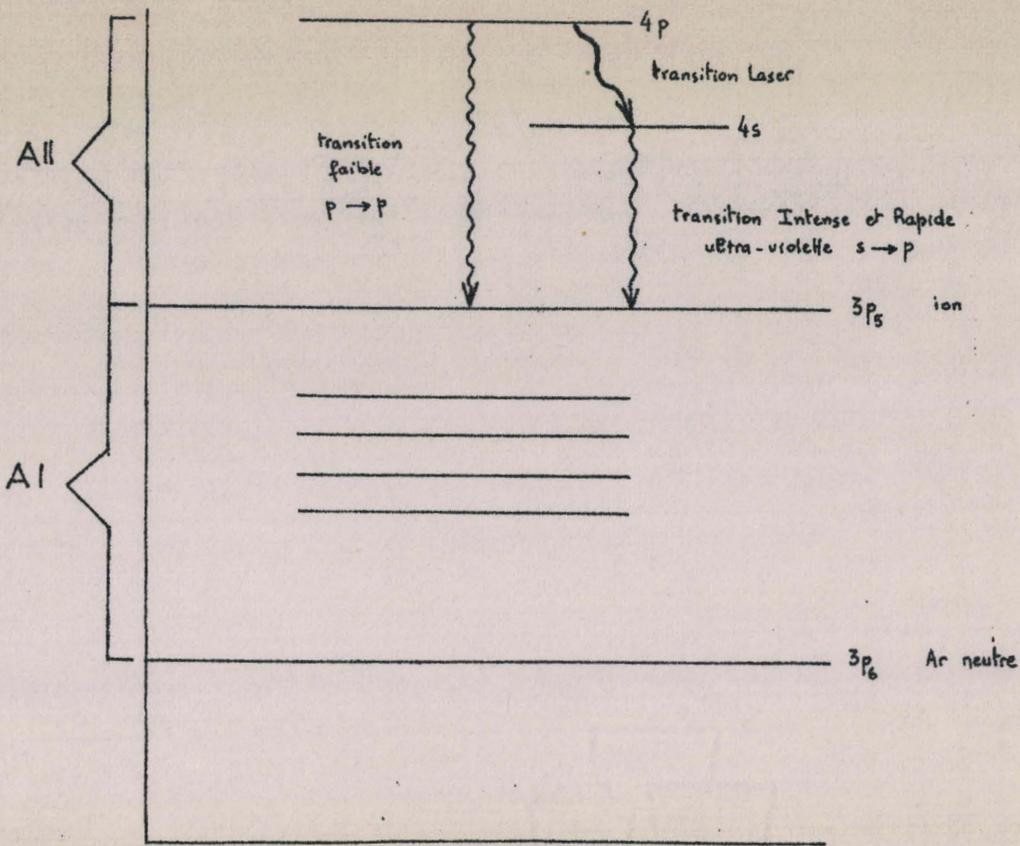


Les forces qui régissent les interactions électron - électron et électron - noyau auront été perturbées par l'absence de l'électron éjecté. Par conséquent, les photons émis par les électrons dans les transitions de leur nouvelle configuration auront des énergies différentes de celles observées précédemment. C'est le spectre de l'atome une fois ionisé. Le niveau fondamental de l'ion correspond au potentiel d'ionisation de l'atome neutre, c'est à dire à l'énergie juste suffisante pour détacher un électron périphérique. Le spectre de l'atome est appelé spectre I (argon I et néon I-) celui de l'ion est appelé spectre II (argon II ou  $Ar^+$ ) (Fig. 4) (2).

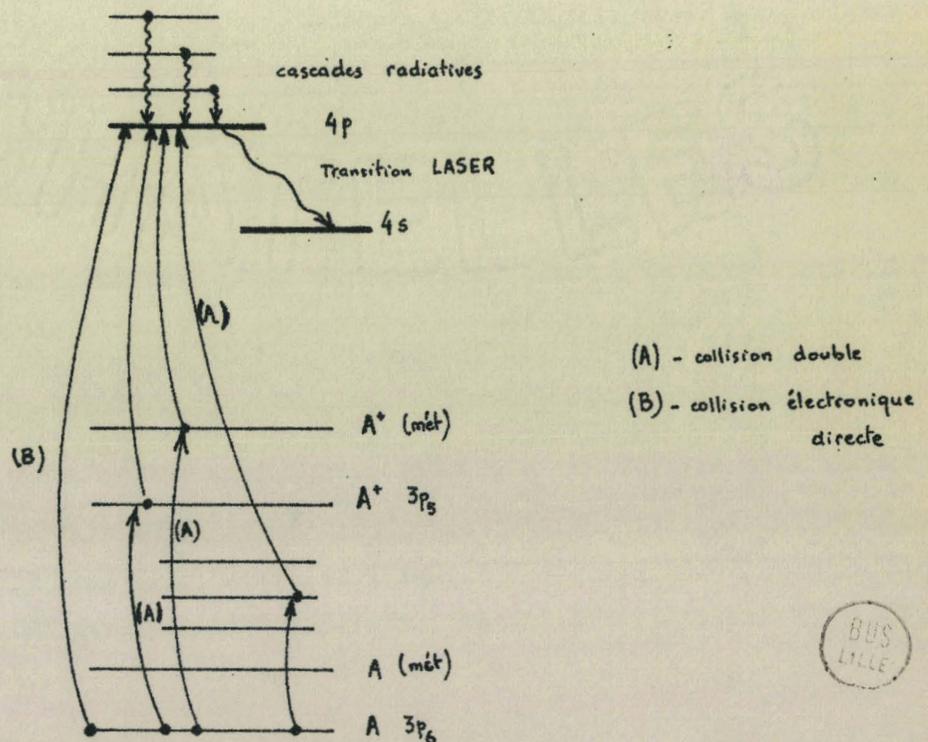
Des décharges en impulsions ont été très employées dans les gaz pour mettre en jeu les processus d'échange d'énergie suivants :

- I - collision électronique du premier ordre : (I atome reçoit de l'énergie de la part d'un électron).
- 2 - collision électronique du second ordre : (I atome excité cède de l'énergie à I électron).
- 3 - émission de rayonnement spontané par I atome excité.
- 4 - absorption de rayonnement par I atome.
- 5 - émission de rayonnement stimulé par I atome. (3)

Les lasers à gaz ioniques peuvent fonctionner en impulsions ou en continu. Le premier régime est très avantageux car il permet d'envoyer dans le milieu gazeux des densités de courant très importantes jusqu'à  $3000 A/cm^2$ , ce qu'il n'est pas possible d'obtenir en fonctionnement continu. Il est donc possible d'atteindre en impulsions de très hauts degrés d'ionisation permettant l'oscillation laser sur les spectres du gaz doublement et triplement ionisé. On obtient ainsi une très grande densité d'ions ; un très grand nombre d'ions actifs peuvent participer à l'émission stimulée. Il s'avère nécessaire d'obtenir



(fig. 4) - Situation favorable à un effet laser - (2)



(fig. 5) - Peuplement du niveau supérieur laser. - (2)



dans certaines applications un rayonnement continu, il faut alors avoir recours à toute la technologie de l'arc stabilisé en courant continu (10 à 15 A dans un tube capillaire de 3 mm de diamètre).

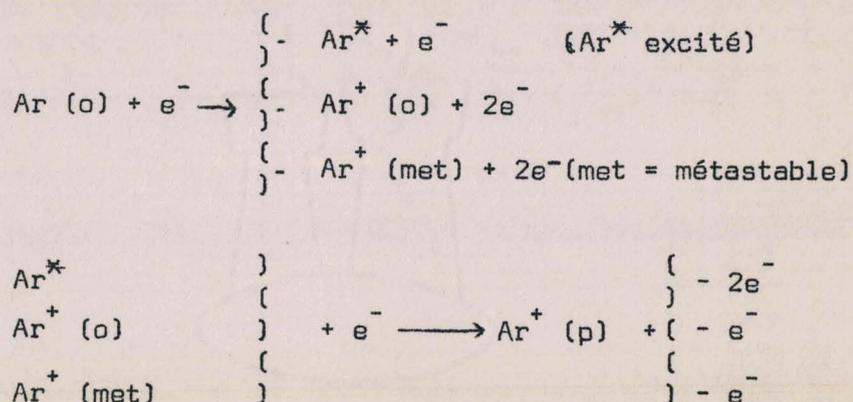
## VI - F o n c t i o n n e m e n t du L a s e r à A r g o n I o n i s é

En supposant acquises les conditions de pression et de courant dont dépendent les modes d'excitation par collisions électroniques ou ioniques, on peut examiner les processus d'inversion dans les lasers ioniques dans le cas d'une excitation des niveaux par électrons. Le modèle décrit ci-joint représente un état caractéristique : dans une déchargeuse gazeuse de haute intensité, les niveaux d'énergie de l'atome neutre sont pratiquement tous en équilibre thermodynamique, alors que ceux de l'ion s'en éloignent notablement. La très grande majorité des transitions lasers sont de type  $p \longrightarrow s,p$  étant la configuration électronique du niveau supérieur et  $s$  celle du niveau inférieur. Les configurations des niveaux fondamentaux de l'ion et de l'atome neutre sont du type  $p$ . Les règles de sélection de la mécanique quantique favorisent les transitions  $p \longrightarrow s$  par rapport aux transitions  $p \longrightarrow p$  ; en conséquence, le niveau inférieur du type  $s$  se vide très rapidement par une transition ultra violette  $s \longrightarrow p$  vers le niveau fondamental. Le niveau supérieur ne pouvant se vider aussi rapidement parce que la transition est du type  $p \longrightarrow p$ . L'inversion de population découle de la différence des durées de vie des 2 niveaux (Fig. 4) (2).

Si on examine le peuplement des niveaux à partir de collisions électroniques, la mécanique quantique favorise les transitions  $p \longrightarrow p$  par rapport aux transitions  $p \longrightarrow s$  dans les collisions avec électrons rapides. Par conséquent, sont favorisées les collisions directes :



Les niveaux peuvent être peuplés par cascades radiatives à partir de niveaux supérieurs et par des collisions doubles à partir des nouveaux intermédiaires selon le schéma (fig. 5) :



Il faut  $2e^-$  pour obtenir un état p ce qui donne bien une variation quadratique de la puissance laser en fonction du courant d'excitation (3).

Il faut noter que l'importance relative des collisions directes, doubles et des cascades radiatives varie beaucoup avec les pressions et courants. Le rôle précis de chacune de ces façons de peupler les niveaux supérieurs n'a pas été élucidé.

## VII - Montage Réalisé

### I - TECHNIQUE du VIDE

Nous avons utilisé deux bâtis de pompage et de remplissage. Chacune de ces installations se compose d'une pompe primaire à palettes et d'une pompe à diffusion. L'une de celles-ci est à l'huile, l'autre à mercure. Elles permettent d'obtenir des vides de l'ordre de  $10^{-5}$  Torr. Les bouteilles de gaz rares (Hélium, Néon, Argon, Krypton, Xénon), réunies à l'installation, permettent

le remplissage du tube à décharge en variant la nature et la pression des gaz (fig.6)

Nous avons principalement utilisé deux jauges dans le montage :

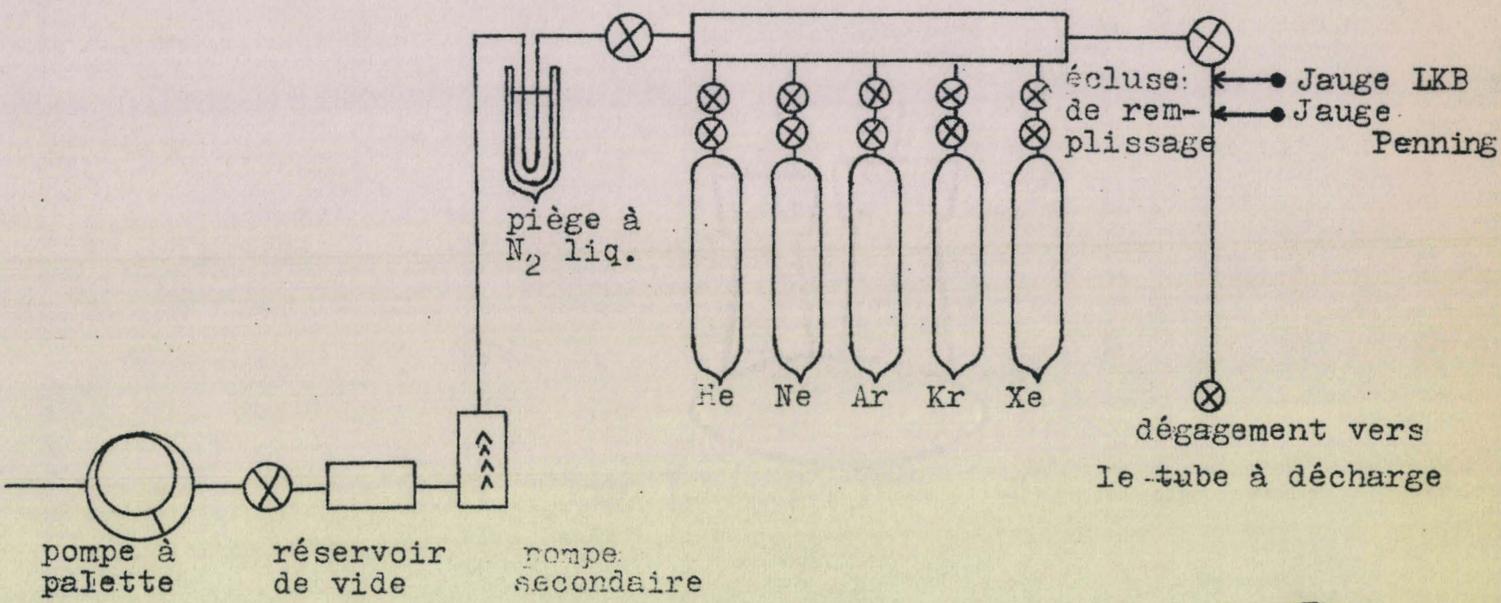
- la jauge Penning, dont la gamme de sensibilité couvre l'intervalle  $10^{-2}$  à  $10^{-5}$  mm de Hg. Elle nous a permis de juger de la valeur du vide et du dégazage de l'installation.

- la jauge LKB dont la sensibilité va de  $10^{-4}$  à 100 mm de Hg. Cette dernière est particulièrement utilisée pour la mesure des pressions lors de l'introduction des gaz rares dans le tube. Elle présente toutefois un inconvénient car, très sensible aux décharges électriques, elle ne peut être placée dans le tube lui-même ni à proximité immédiate de celui-ci.

Le détecteur de fuites à halogène nous a permis de déceler les micro-fuites de l'installation, d'améliorer ainsi les vides limites, donc d'opérer sur des gaz pratiquement purs (99 %). Les pressions de remplissage, très faibles sont fonctions des gaz et de la longueur d'onde désirée. Les valeurs sont de  $10^{-2}$  à  $10^{-3}$  Torr pour les raies bleues et vertes de l'argon ionisé. Les faibles pressions liées aux très fortes intensités du courant crête et le comportement des électrodes provoquent une rapide pollution du gaz ; cette dernière implique un renouvellement fréquent des gaz dans le tube.

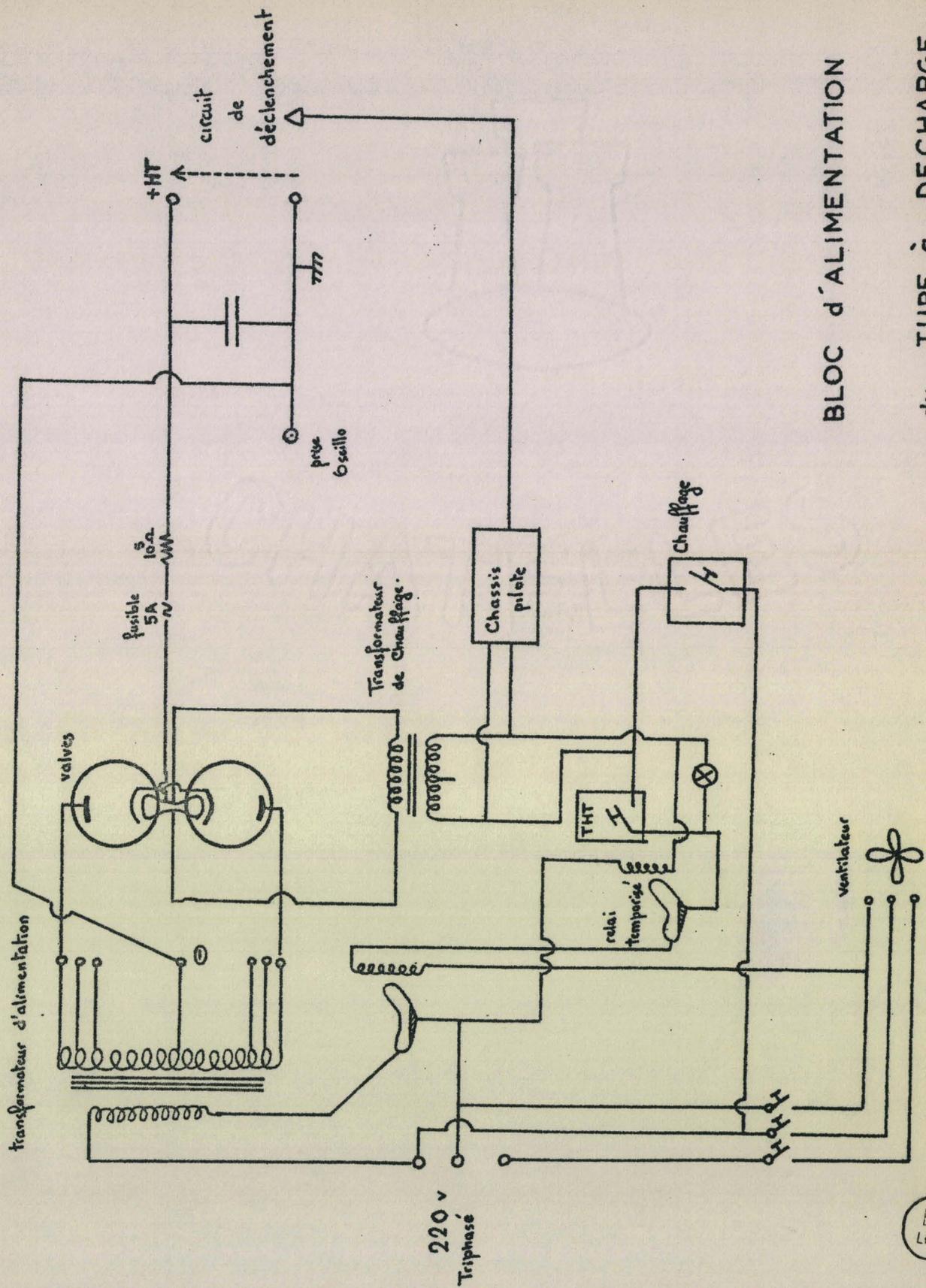
## 2 - L'ALIMENTATION ELECTRIQUE

Nous avons repris un montage existant de M.DELHAYE, qui permet d'obtenir une haute tension continue à l'aide de deux phanotrons. Le bâti est conçu de telle sorte qu'il soit possible de charger une batterie de condensateurs (0 - 24  $\mu$ F) à 4 000 volts. Le courant crête passant dans le tube est fonction de l'énergie emmagasinée par les condensateurs. Ces derniers se sont avérés ne pas être adaptés au rythme rapide des charges et décharges imposé par le



(fig. 6) Schéma de l'installation de pompage.





BLOC d'ALIMENTATION  
du TUBE à DECHARGE

FIG. 7

BUS  
LILLE

générateur d'impulsions. Un montage n'utilisant qu'un seul phanotron nous permet toutefois d'obtenir des tensions plus élevées jusque 7 000 volts. (Fig. 7).

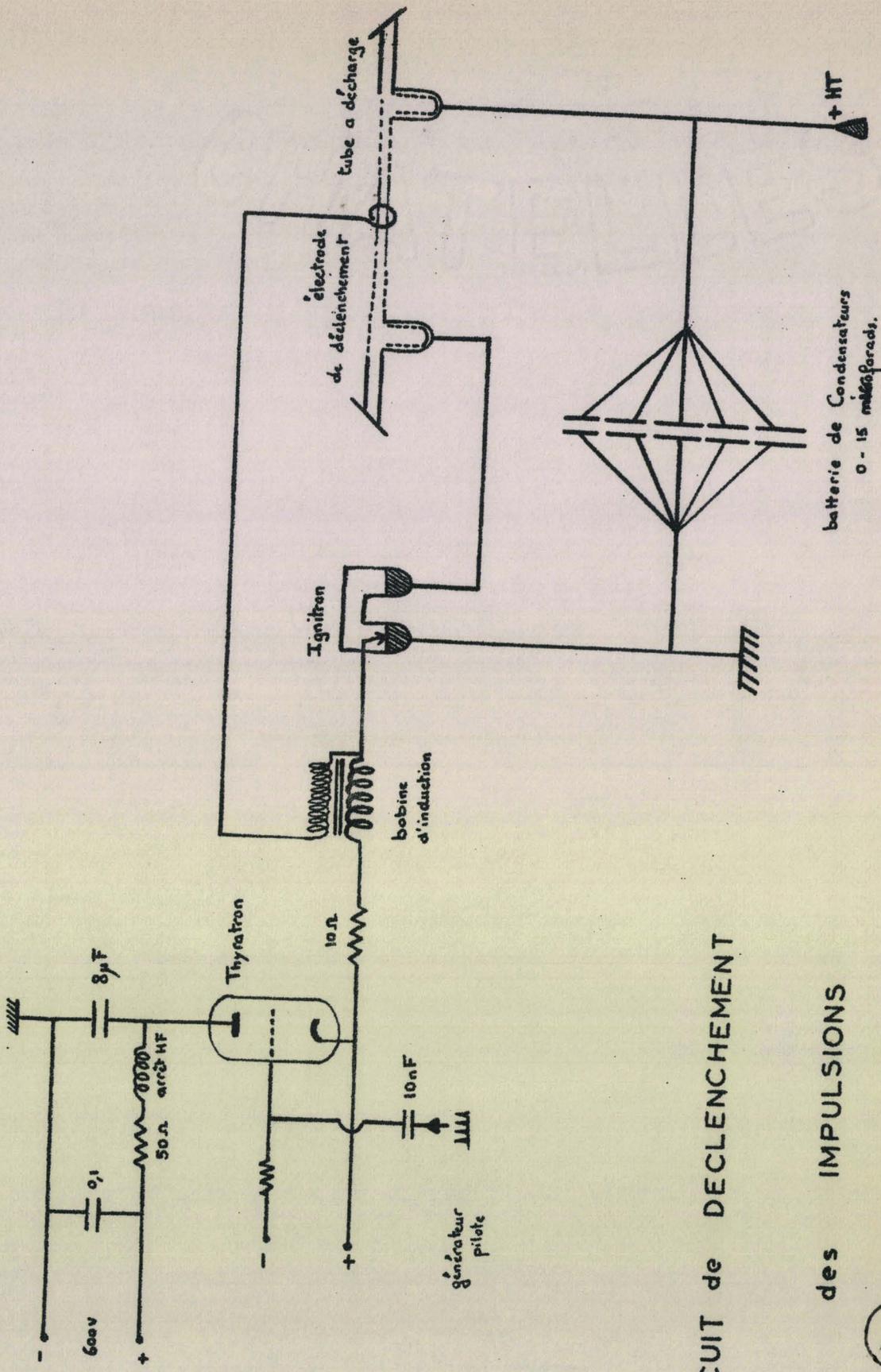
### 3 - CIRCUIT de DECLENCHEMENT

Nous avons utilisé deux montages :

a) un banc de condensateurs de quelques microfarads (2,4,6...) chargé par une alimentation de 4 kilovolts est relié en parallèle aux deux électrodes de Tungstène du tube à décharge. Une impulsion de préionisation de haute tension, fournie par une bobine d'allumage de voiture dans une électrode auxiliaire, permet la décharge du banc de condensateurs (Fig. 8).

Toutefois, la décharge ne doit s'amorcer qu'au rythme voulu : nous avons obtenu ce déclenchement par igniteur (lampe de type ignitron) ; cette lampe est munie d'une électrode semi-conductrice (en carbure de bore) appelée "igniteur" qui plonge dans le mercure cathodique. Un condensateur de quelques microfarads chargé sous 500 volts est déchargé périodiquement à travers un thyatron dans le circuit igniteur, ce qui déclenche la décharge principale en moins d'une micro seconde. L'ignitron n'est donc qu'un interrupteur qu'on ferme au rythme des impulsions du générateur pilote.

b) Pour éviter que le tube ne reste allumé à certaines tensions et à certaines fréquences de déclenchement, nous avons utilisé un montage faisant intervenir un transformateur d'impulsions. On décharge comme précédemment une batterie de condensateurs (2,4,6  $\mu$ F, 3 000 volts) dans le primaire du transformateur d'impulsions. Les tensions recueillies au secondaire sont de plusieurs dizaines de kilovolts (15 à 40 KV). Les condensateurs se déchargent dans l'enroulement du primaire lorsqu'un thyatron à hydrogène (3 C 45 puis 4 C 35) - (PHILIPS) est rendu passant par les impulsions du générateur pilote.



CIRCUIT de DECLENCHEMENT

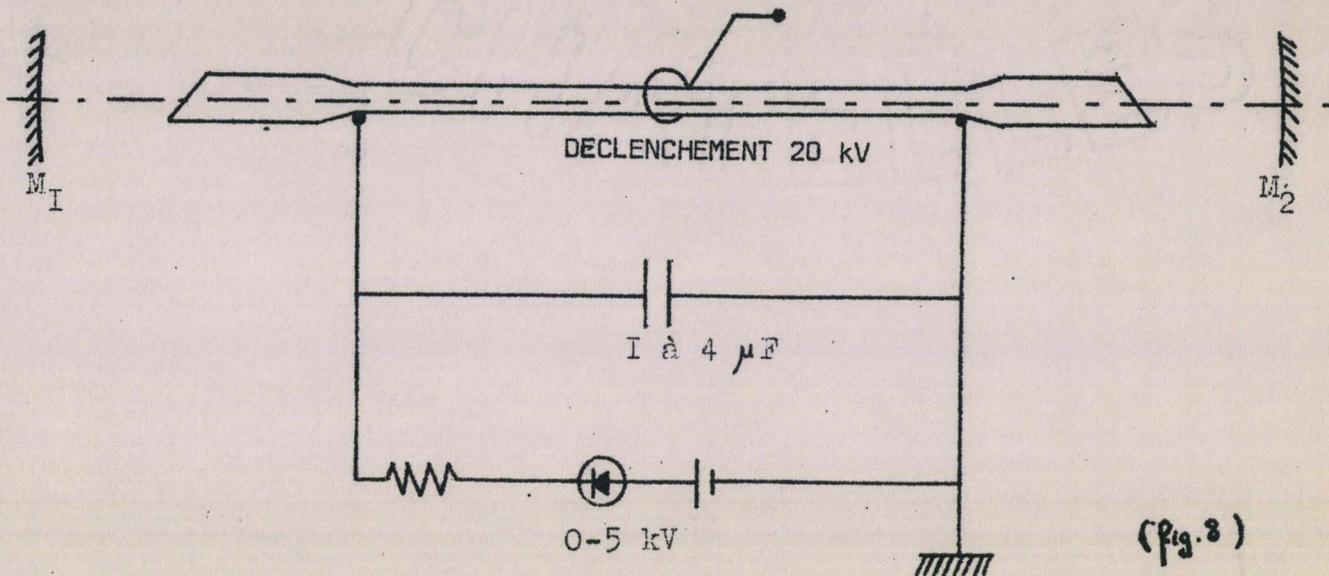
des IMPULSIONS



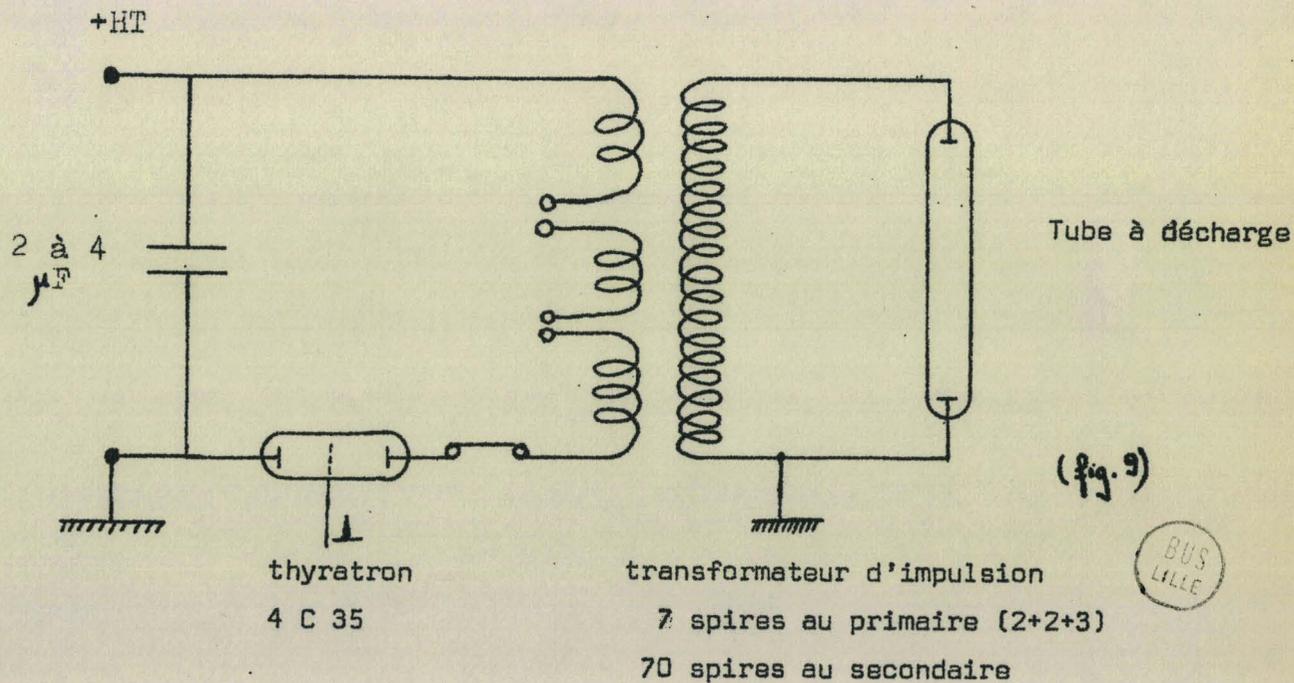
FIG. 8

CIRCUITS DE DECLENCHEMENT DES IMPULSIONS

1/



2/



c) Le générateur pilote (4) : Il importe d'amorcer la décharge de l'éclair à l'instant où les deux tubes redresseurs (phanotrons) qui assurent la charge des condensateurs sont éteints, sinon ils seraient rapidement mis hors d'usage, c'est pourquoi le dispositif de déclenchement délivre des impulsions de phase convenable à la cadence  $F_i$ , liée à la fréquence du secteur  $F_r$  par la relation :

$$F_i = \frac{2 F_r}{n} \quad (n = \text{nombre entier})$$

Le réseau déphaseur comprend une résistance et une capacité dans le circuit secondaire d'un transformateur. Le signal recueilli aux bornes du secondaire est déphasé de  $\varphi = \text{arc tg } \frac{1}{RC\omega}$  par rapport au signal d'entrée. Le signal du réseau déphaseur est amplifié puis écrêté afin d'obtenir un courant créneau. Ce signal est dérivé : en pratique on couple 2 systèmes différentiels en opposition de phase afin d'obtenir une fréquence double ; à ce niveau, on ne sélectionne que les impulsions positives qu'on recueille à la fréquence de 100 Hz.

d) Les tubes à décharges : nous en donnons un schéma de principe (fig. II). Il est constitué d'un tube en verre capillaire (diamètre 3 à 4 mm), terminé par des fenêtres à incidence brewstérienne. La décharge s'effectue entre 2 électrodes. Les différents tubes décrits ci-dessous ont fonctionné pour l'Argon ionisé.

Nous avons successivement utilisé en laboratoire :

- un tube à cathode à oxyde et anode en cuivre ; ce tube est conçu pour un fonctionnement en continu, c'est à dire qu'il est susceptible de supporter un courant supérieur à 10 ampères ; il présente l'intérêt de fournir une décharge très nourrie car les électrons fournis par la cathode chaude et accélérés par une haute tension positive (300 V) augmentent considérablement les probabilités de chocs donc d'excitation des atomes.

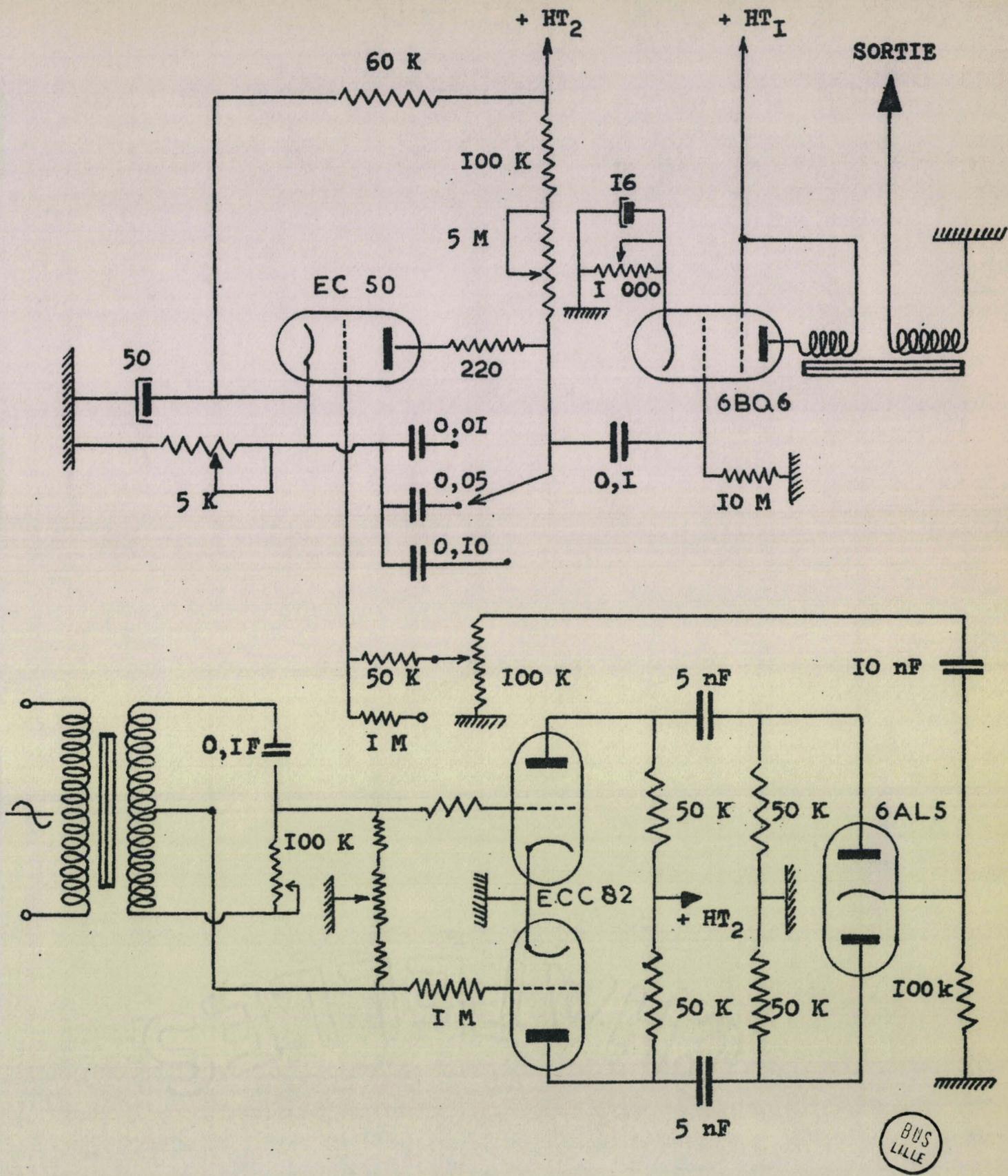
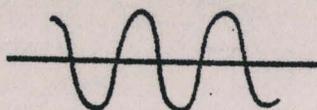


Figure 10: Générateur d'impulsions pilote. (4)

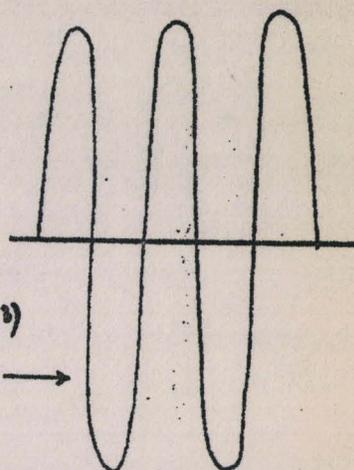


1) Signal du réseau

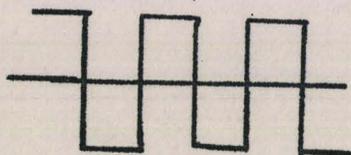


2) Signal déphasé

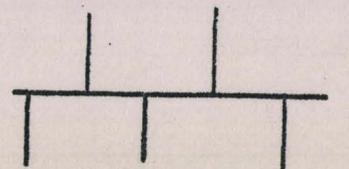
Signal amplifié →



3)



4) Signal écrété

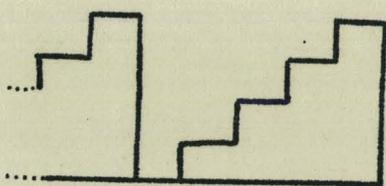


5)

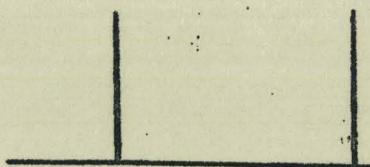
Signal différencié



6) Impulsions positives,  $N=100$



7) Signal intégré



8) Signal à la fréquence

$$F = \frac{100}{n} \quad (n \text{ entier})$$

Illustration graphique des opérations effectuées dans le générateur pilote



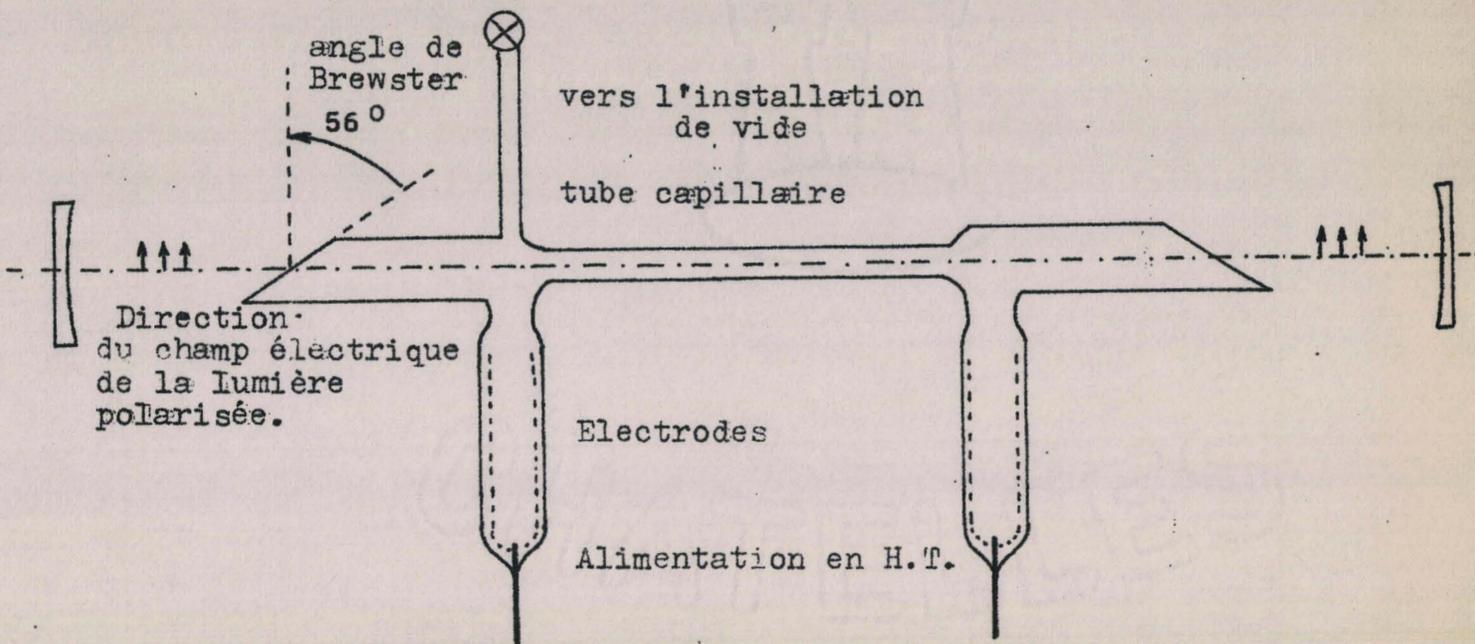
- un tube à électrodes à grande surface en aluminium.

Ces dernières présentaient l'intérêt d'être très efficaces dans l'amorçage du tube, mais l'aluminium adsorbe rapidement certains gaz (Hélium) à la suite d'un certain temps de fonctionnement. Les pressions partielles des gaz rares, ainsi que la pression totale dans le tube variaient suffisamment pour diminuer très rapidement le nombre de chocs efficaces prévus ; donc l'intensité du rayonnement stimulé. On notera par la suite la grande influence de la pression partielle du gaz rare sur l'intensité du rayonnement laser. Ce tube expérimental s'est d'ailleurs rapidement pollué à la suite d'intenses pulvérisations cathodiques.

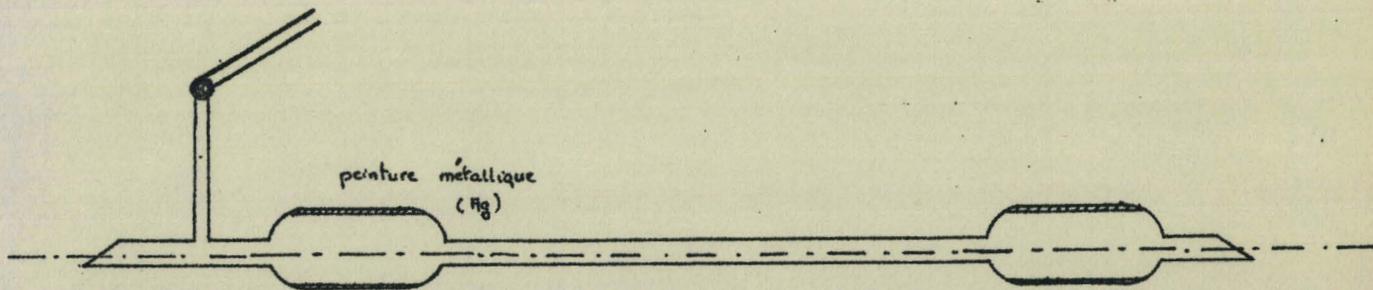
- un tube à électrodes de grande surface en Nickel préalablement dégazées par chauffage haute fréquence, nous a semblé améliorer les résultats précédemment acquis et pallier aux défauts du tube précédent. Le dégazage des électrodes en Nickel étant très inférieur à celles en Aluminium.

- un tube à électrodes de tungstène . Nous n'avons pas rencontré de problème d'amorçage avec ce tube bénéficiant des effets de pointes des électrodes portées à des potentiels élevés.

- un tube à électrodes de mercure. Nous avons observé l'émission laser dans ce tube mais avec des pressions très faibles d'argon ; la pression partielle de mercure dans le tube n'étant pas négligeable à température ordinaire. Nous avons constaté qualitativement une amélioration substantielle de l'intensité du plasma lors du chauffage d'une électrode de mercure. Toutefois, si le chauffage est trop intense, les vapeurs de mercure semblent piéger les ions d'argon . Il a été adjoint par la suite une électrode auxiliaire à la cathode afin d'y entretenir en permanence un arc électrique ( $V = 70$  volts et  $I = 5$  à  $10$  ampères). Il résulte de cet arc la présence d'une tache cathodique qui présente l'avantage de nourrir en électrons la décharge principale dans le tube. Afin d'éviter une pollution rapide du tube et de ses faces par des



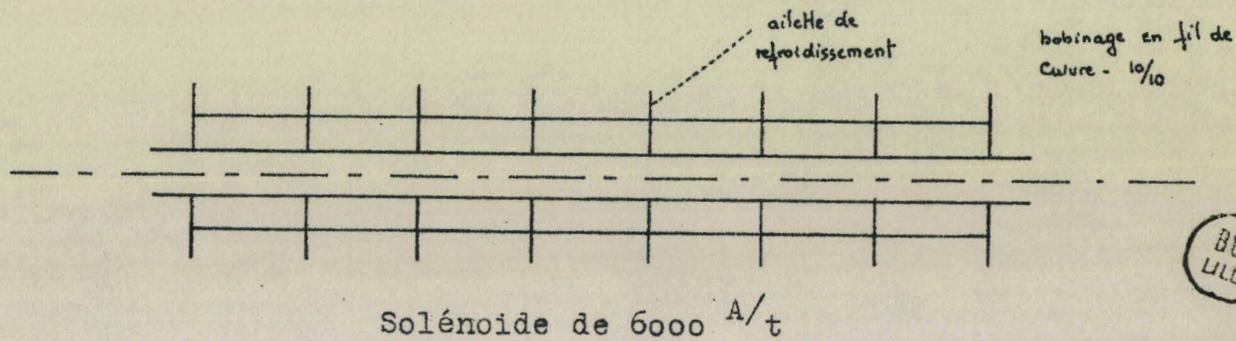
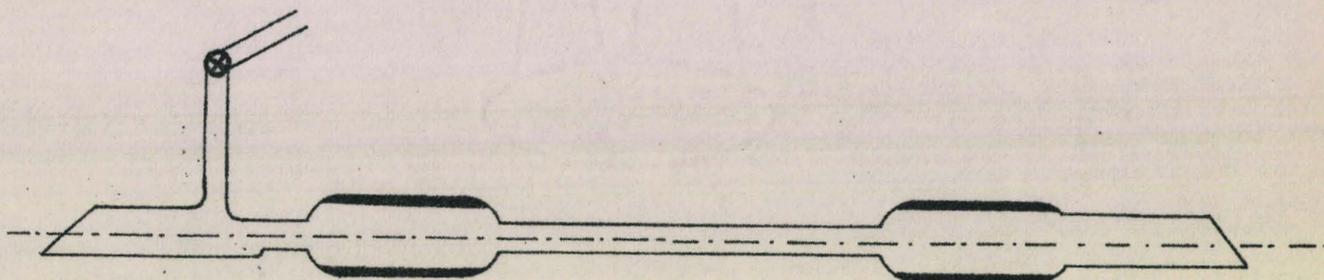
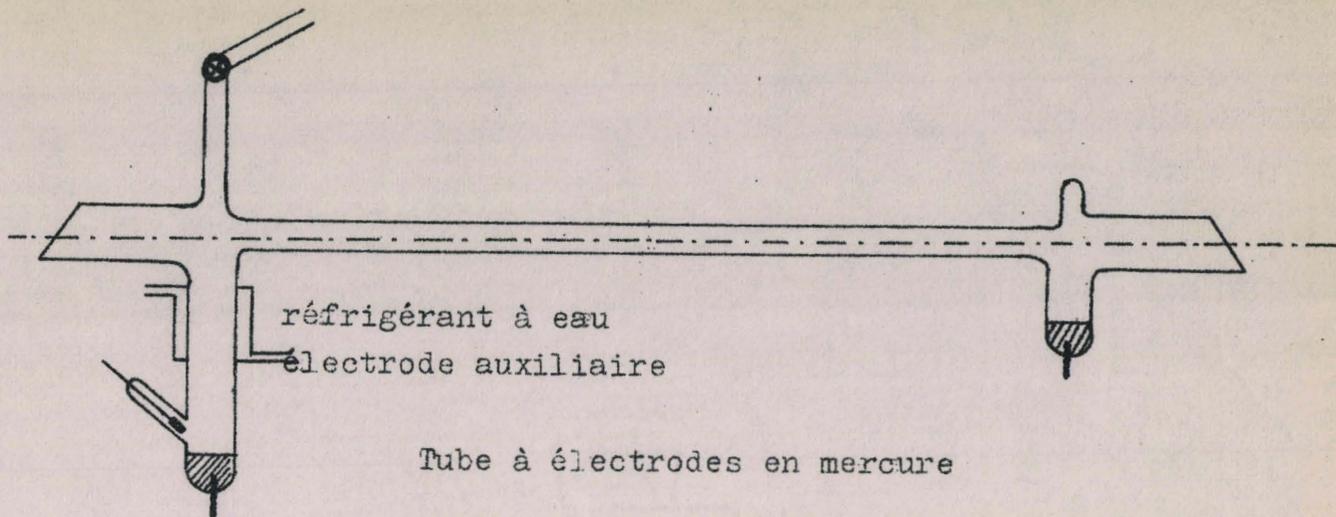
(fig. 41) Type de tube à décharge -



Tube à électrodes extérieures

BUS  
LILLE

(fig. 11)



BUS  
LILLE

vapeurs de mercure qui s'y condensent, la cathode est surmontée d'un réfrigérant à eau. L'émission laser est apparue très irrégulièrement lors de cette étude ; nous l'avons attribuée à une pression partielle de mercure trop élevée et à l'absorption probable de l'argon par l'électrode auxiliaire de graphite en régime d'arc.

- un tube à électrodes "extérieures" ne nous a pas fourni les résultats escomptés : un premier tube à électrodes latérales et un second à électrodes axiales ont été conçus. Pour éviter les variations de pression consécutives au dégazage des électrodes métalliques internes, nous avons construit un tube à grandes électrodes de verre, d'épaisseur très fine (1mm), sur la surface desquelles est appliquée une peinture métallique. Nous avons comme prévu observé une décharge capacitive dans le tube, mais insuffisamment nourrie pour observer le seuil d'oscillation dans la cavité.

- un tube à électrodes annulaires de Kovar, dans l'axe du capillaire nous a permis d'améliorer les conditions de décharge. L'intérêt d'un tel tube réside dans le fait que pour une longueur de capillaire donnée, la longueur de la décharge se trouve diminuée d'environ 1/5 de la longueur du tube.

La mise au point de ces différents tubes nous a montré l'importance du choix des électrodes et de leur comportement, des caractéristiques géométriques du tube et de la qualité des faces sous incidence Brewstérienne. La pollution rapide de celles-ci nous a amené à ne plus les coller sur le tube. L'étanchéité de ce tube étant assurée par une fine couche de graisse à vide. Cette solution, acceptable pour un montage expérimental, nous laisse la possibilité de démonter les faces facilement et de nettoyer régulièrement leur face interne à la suite du dépôt de pulvérisations cathodiques (ex : Hg).

Dans toutes ces expériences, la longueur du capillaire qui constitue le tube à décharges est de 1 mètre et son diamètre intérieur de 3 à 4 mm.

### VIII - Réglage du Tube

#### et de la Cavité Résonante

a) Le tube est maintenu à l'aide de 3 vis isolantes, ce qui donne à l'expérimentateur tous les degrés de liberté nécessaires pour le régler et l'aligner sur un faisceau laser continu (laser O.I.P. - Hélium - Néon  $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ ). Extérieurement et de part et d'autre du tube, nous avons placé des miroirs à couches multidiélectriques dont le maximum de réflexion est choisi pour l'intervalle de longueurs d'onde, que l'on veut obtenir. Nous avons adopté la configuration confocale qui permet de réaliser des réglages plus aisés (miroirs M.T.O. et O.I.P. pour  $4200 \text{ \AA}$ ,  $4880 \text{ \AA}$  et  $5000 \text{ \AA}$ ). Chaque couple de ces miroirs est constitué d'un miroir à réflexion maximum (98 à 99 %) et d'un autre à réflexion partielle (85 à 94 %). Chacun d'entre eux a un rayon de courbure égal à deux mètres. L'adaptation de ces miroirs dans un support rigide et mobile sur le banc d'optique doit assurer la stabilité nécessaire au système interférométrique du type Perot Fabry. Un montage à trois vis permet le réglage précis de la position des miroirs.

b) Réglages optiques : L'utilisation d'un laser Hélium Néon émettant la raie  $6328 \text{ \AA}$ , a grandement facilité l'alignement du tube par suite de l'intensité, de la directivité et de la faible divergence du faisceau. Le faisceau matérialise l'axe principal parallèle au banc d'optique ; il passe par le centre des supports de miroirs. Il peut être diaphragmé par un trou de très faible diamètre D. Le problème est d'aligner le tube sur un faisceau et ceci est réalisé

si en le fixant à une extrémité A et en lui faisant subir en B de faibles déplacements (rotation ou translation), le faisceau à la sortie du tube garde une direction inchangée.

Si l'image obtenue sur un écran placé en I se déplaçait, nous pourrions conclure à une image obtenue à la suite d'une ou plusieurs réflexions sur les parois du capillaire (Fig. I2).

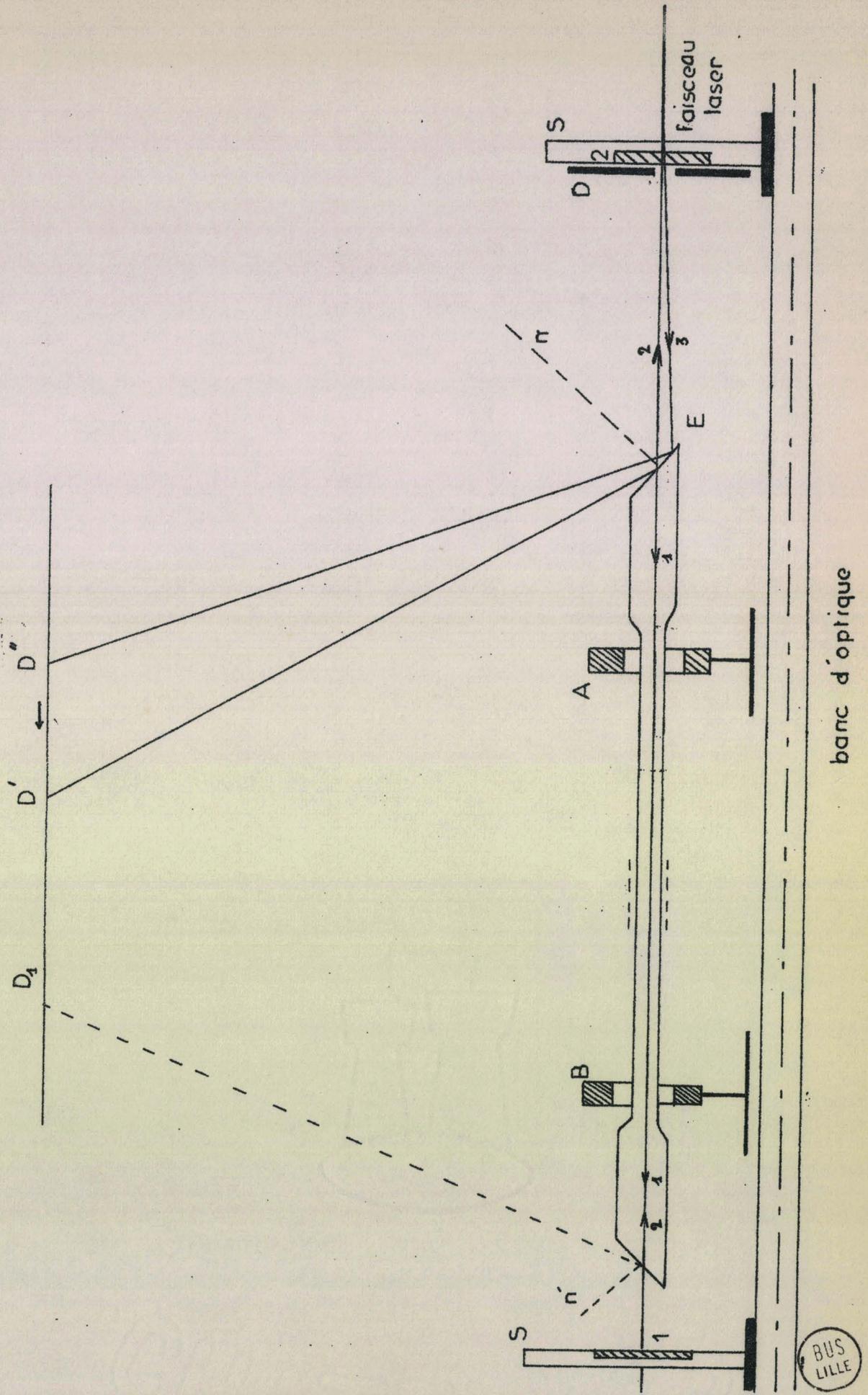
Nous plaçons alors le miroir I de la cavité à l'aide des trois vis de son support. On cherche à faire coïncider le faisceau réfléchi et le faisceau incident, ce qui revient à faire coïncider l'image obtenue par réflexion sur le miroir I, du trou circulaire avec ce dernier. Le miroir I est alors réglé. Nous plaçons alors le miroir 2 sur son support. Le faisceau incident donnait par réflexion sur la première face sous incidence brewstérienne une image D' au plafond. Le miroir 2 sera réglé, c'est à dire parallèle au miroir I, lorsque le faisceau incident qui aura traversé le tube sera réfléchi par le miroir I, puis par le miroir 2 et enfin par la face d'entrée du tube pour donner de D une image D" superposable à D'.

Pour obtenir cette superposition, il faut avoir pris soin lors de la construction du tube de bien définir le plan des normales aux faces afin que lors de l'ultime réglage les trois taches D', D" et D<sub>1</sub> déterminent une direction parallèle à celle du tube.

Ce réglage est très précis, il eût été extrêmement plus délicat avec les sources de lumière conventionnelles. Il permet "d'accrocher" très facilement l'émission laser. Le réglage fin s'effectue lorsque le tube fonctionne.

Réglage  
de la cavité résonnante

(fig. 12)



## IX - R é s u l t a t s

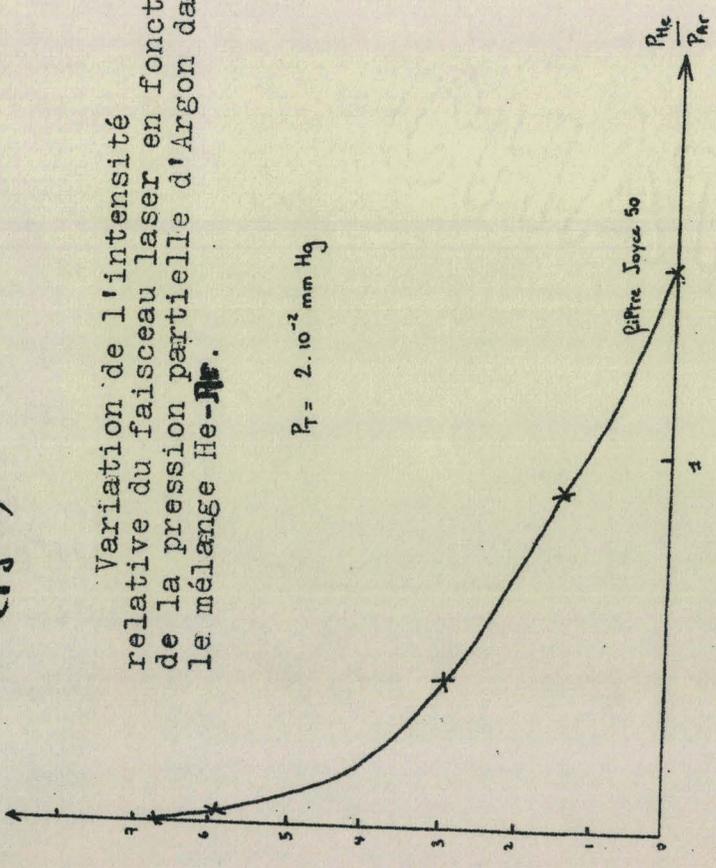
A - INFLUENCE de la PRESSION d'ARGON sur l'EMISSION STIMULEE :

Nous avons relevé à l'aide d'une cellule B.P.Y.I3., les intensités relatives de l'ensemble des raies émises. Cette cellule est un détecteur à jonction au silicium pour rayonnements visibles et proche infra-rouge. Pour des pressions de gaz de  $1,5 \cdot 10^{-2}$  à  $4,4 \cdot 10^{-2}$  Torr, nous avons relevé la variation de l'intensité du faisceau laser en fonction du rapport des pressions partielles des gaz rares. En dehors de cet intervalle de pression, nous n'observons plus d'émission stimulée pour l'argon pur. Cette étude des intensités a été réalisée sur oscilloscope ce qui a permis de mesurer en même temps la largeur de l'impulsion laser. Ces mesures ont été réalisées pour un seul couple de miroirs ( $4880 \text{ \AA} - \text{M.T.O.}$ ). Il est à remarquer qu'en dehors de l'intervalle de pressions donné ci-dessus, l'argon pur ne "lase" plus. Nous nous sommes aperçu que le rendement à une pression donnée dépendait beaucoup de certaines impuretés dont la présence dans le tube faisait décroître très rapidement l'intensité du faisceau, parmi celles-ci, l'air, les vapeurs de mercure ou des pulvérisations cathodiques telles que celles observées avec les électrodes en aluminium. Par contre, la présence d'autres impuretés semble favoriser l'émission stimulée : au bout d'un certain temps de fonctionnement, la pression totale dans le tube augmente, double même dans certains cas, à la suite de dégazages successifs ; un réajustement à la pression initiale qui correspond donc à une diminution de la pression partielle de l'argon modifie l'intensité du faisceau dans le sens d'une augmentation, tout autre paramètre expérimental restant inchangé par ailleurs. Nous observons ce phénomène pour deux réajustements

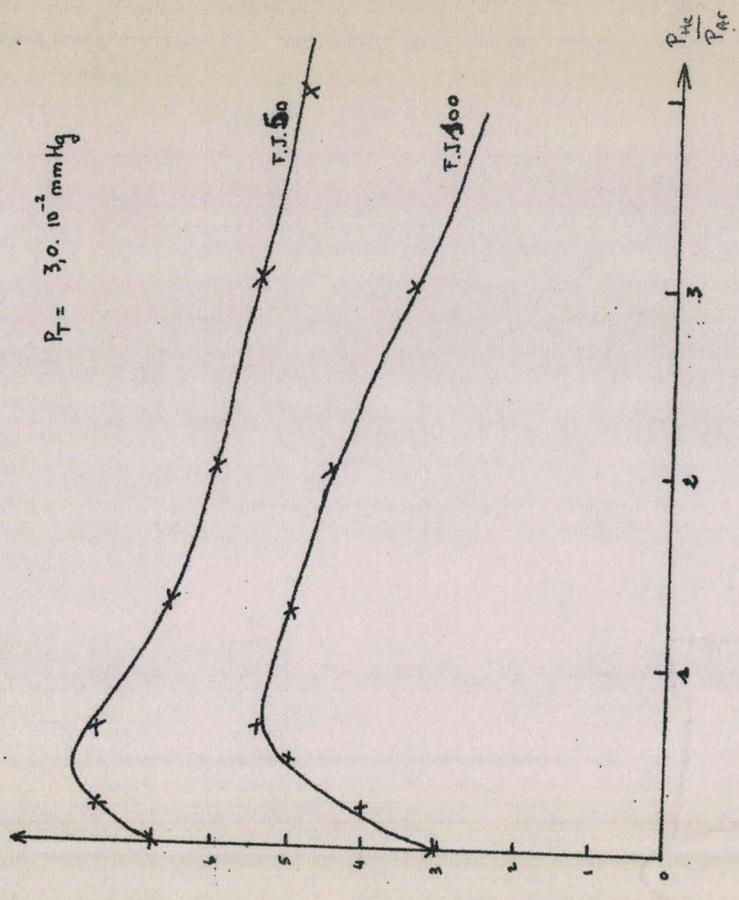
(fig. 13)

Variation de l'intensité relative du faisceau laser en fonction de la pression partielle d'Argon dans le mélange He-~~Ar~~.

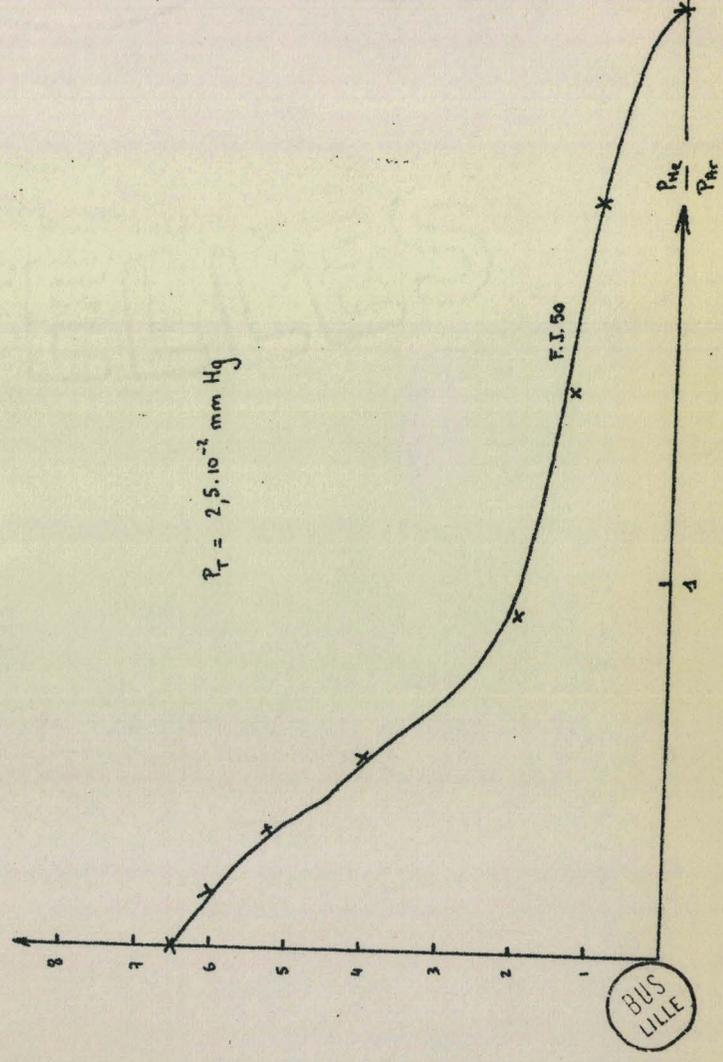
$P_T = 2 \cdot 10^{-2}$  mm Hg



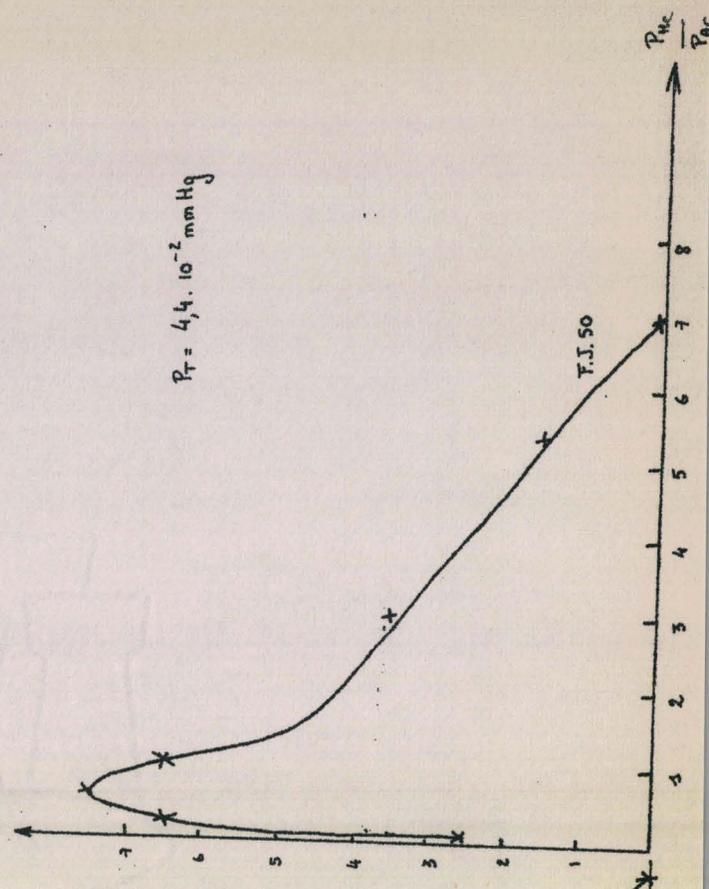
$P_T = 3,0 \cdot 10^{-2}$  mm Hg



$P_T = 2,5 \cdot 10^{-2}$  mm Hg



$P_T = 4,4 \cdot 10^{-2}$  mm Hg



BUS LILLE

successifs, à la suite desquels, l'intensité du faisceau gagne en intensité à chaque appauvrissement. Nous avons observé par ailleurs que l'intensité du faisceau laser pour une pression donnée du gaz variait d'un tube à l'autre, ce qui semble démontrer l'importance de la géométrie de ceux-ci. La puissance maximale observée pour le tube à électrodes en aluminium est de 300 à 400 mWcrète, la durée de l'impulsion étant de 2 à 5  $\mu$ S. La puissance obtenue au tube à électrodes en Kovar semble être deux fois supérieure pour une même durée d'impulsion. Les mesures ci-jointes ont été relevées sur le premier tube, elles sont données à titre indicatif et soulignent l'existence de mélanges optima He-Ar très critiques. (fig. I3).

Nous avons successivement obtenu l'émission d'un rayonnement stimulé avec de l'argon pur, puis d'argon et d'hélium, qui nous a donné le meilleur rendement, et enfin un mélange d'argon et de néon, de moins bonnes performances mais très stable. Les mélanges argon - krypton et argon - xenon ne nous ont pas permis l'observation de ces raies, ce qui semble confirmer des résultats déjà obtenus. (5.6.7.)

#### B - INFLUENCE du CHAMP MAGNETIQUE

Nous avons contribué à une amélioration très notable de l'intensité du faisceau laser en plaçant la décharge dans un champ magnétique axial fourni par un solénoïde (6000 spires par mètre). Le champ  $40 \cdot 10^{-3}$  Tesla a pour effet de diminuer la diffusion des électrons vers les parois du tube capillaire en première approximation, le nombre des collisions utiles augmente proportionnellement à ce champ magnétique. Un courant de 5 ampères parcourant le solénoïde fournit une amélioration de 20 à 30 % en intensité du faisceau laser. De plus, il permet d'obtenir une émission stimulée pour des pressions voisines de celles constituant les limites de l'intervalle cité ci-dessus. Il permet donc de travailler dans une gamme de pressions sensiblement plus étendue.

Le milieu matériel, siège d'une inversion de population est placé dans un résonateur optique Perot et Fabry composé de deux miroirs à revêtement diélectrique. Ce résonateur est accordé sur la fréquence de la transition à observer.

- Définition du facteur de qualité : le résonateur doit être caractérisé par des pertes très faibles.

Son facteur de qualité est donné par l'expression :

$$Q = \frac{R}{1 - R}$$

R est le coefficient de réflexion.

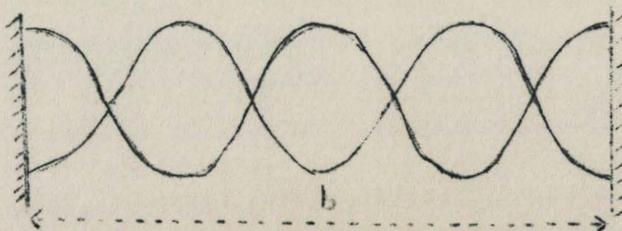
Ce facteur Q est étroitement lié à la largeur des raies. Cette largeur en terme de fréquence pour la résonance est :  $\Delta\nu = \frac{\nu}{Q}$ .

Il faut aussi tenir compte de l'affaiblissement du faisceau dans le matériau et par les pertes dues à la diffraction sur les parois limitant l'appareil. Cette correction est formulée de la manière suivante :

$$Q = \frac{R_1 R_2 e^{-2\alpha b}}{1 - R_1 R_2 e^{-2\alpha b}}$$

- $\alpha$  = coefficient d'affaiblissement (transmission et dispersion)
- b = longueur de la cavité.
- $\left. \begin{matrix} R_1 \\ R_2 \end{matrix} \right\}$  (= coefficients de réflexion des deux miroirs de la cavité résonante.

Remarque :



Après deux réflexions, l'onde se superpose à elle-même. La condition d'oscillation est :

$$n\lambda = 2b$$

or, puisque :

$$v = \frac{c}{\lambda} \quad \Rightarrow \quad v = n \frac{c}{2b}$$

- Définition du gain du laser : le gain dans le milieu actif doit compenser les pertes, il s'exprime par la relation :

$$G = \frac{I}{I_0}$$

- $I_0$  = intensité incidente
- $I$  = intensité transmise.

or :

$$I = I_0 e^{-\alpha x}$$

- $\alpha$  = coefficient d'absorption
- $x$  = longueur de traversée de la radiation

Le coefficient d'absorption peut s'écrire :

$\alpha = (n_1 - n_2) \sigma_\lambda$  , expression dans laquelle  $n_1$  et  $n_2$  sont les nombres des centres d'absorption par unité de volume et  $\sigma_\lambda$  coefficient d'absorption d'une section droite.

$$G = \frac{I}{I_0} = e^{-\alpha x}$$

Si  $n_2 > n_1$        $\alpha < 0$        $G > 1$

Le signal d'entrée sera alors amplifié (8)

- Configuration de la cavité résonante :

Les différentes configurations sont représentées par la fig.15.

Les premières cavités utilisées pour l'obtention d'un faisceau laser furent constituées de miroirs plans parallèles dans le montage classique du Perot-Fabry.

On s'aperçut bientôt que les montages utilisant des miroirs sphériques constituaient aussi une cavité résonante et que ces montages réduisaient la précision requise pour la mise en place des miroirs.

Soient  $R$  le rayon de courbure des miroirs (les deux miroirs sont identiques) et  $d$  leur distance ; plusieurs relations entre  $R$  et  $d$  peuvent définir une cavité résonante. Mais deux configurations ont principalement attiré l'attention c'est à dire l'arrangement confocal pour lequel  $R = d$  et l'arrangement concentrique pour lequel  $R = \frac{1}{2} d$ .

Remarque :

La cavité peut également comprendre un prisme placé au minimum de déviation, ses faces étant approximativement à l'incidence Brewsterienne pour obtenir une sélection de fréquences des raies lasers.

B - CAVITE RESONANTE

Nous avons disposé de quatre couples de "miroirs" ou "filtres" adaptables dans la cavité préréglée dont le coefficient de réflexion est maximum pour  $4200 \text{ \AA}$ ,  $4880 \text{ \AA}$  et  $5000 \text{ \AA}$ .

Caractéristiques des filtres :

	4200 M.T.O.	4880 M.T.O.	4880 O.I.P.	5000 M.T.O.
$R_{\max}$	0,999	0,999	non fourni	0,999
$R_{\text{partiel}}$	0,94	0,86 et 0,94	non fourni	0,94

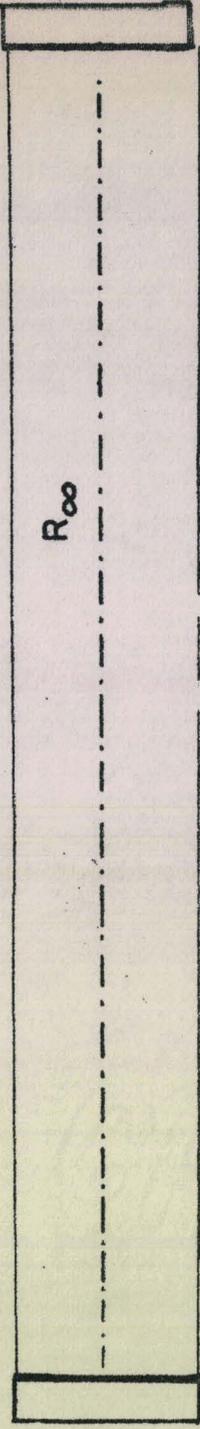
CONFIGURATIONS POSSIBLES de la CAVITE RESONANTE (FIG 15)

$M_2$

$M_1$

Miroirs

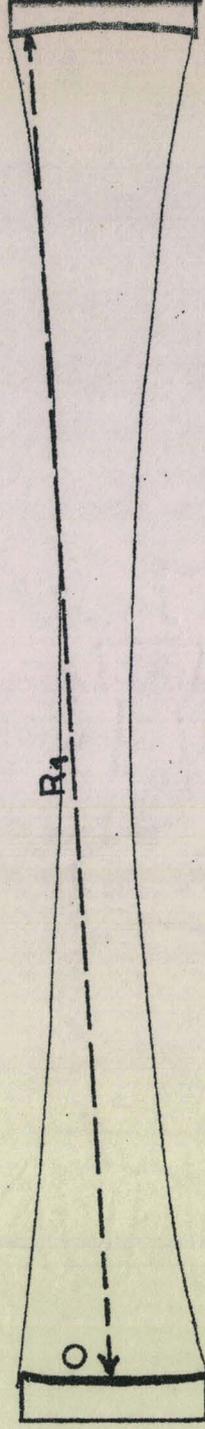
plan parallèle



$R_\infty$

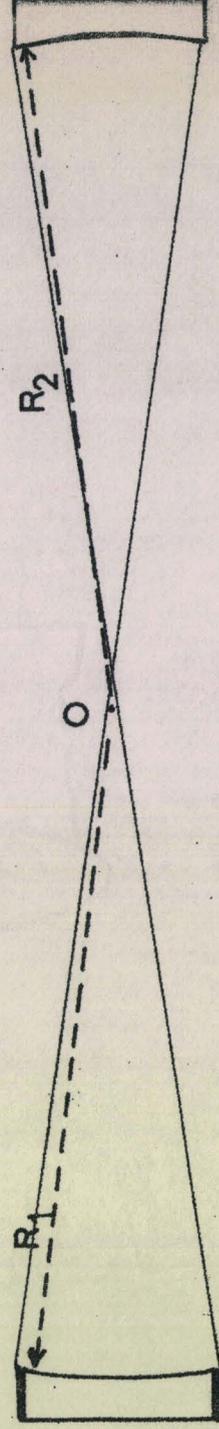
confocaux

$$R_1 = R_2 = D$$



sphériques

$$R_1 = R_2 = \frac{D}{2}$$

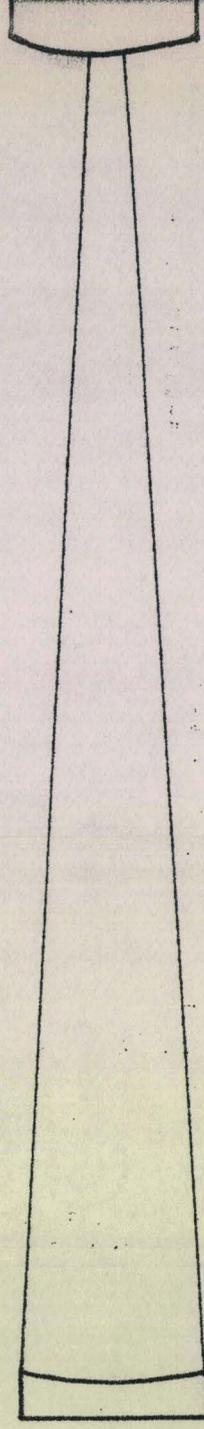


concave

convexe

$$R_1 > D$$

$$R_2 = -(R_1 - D)$$

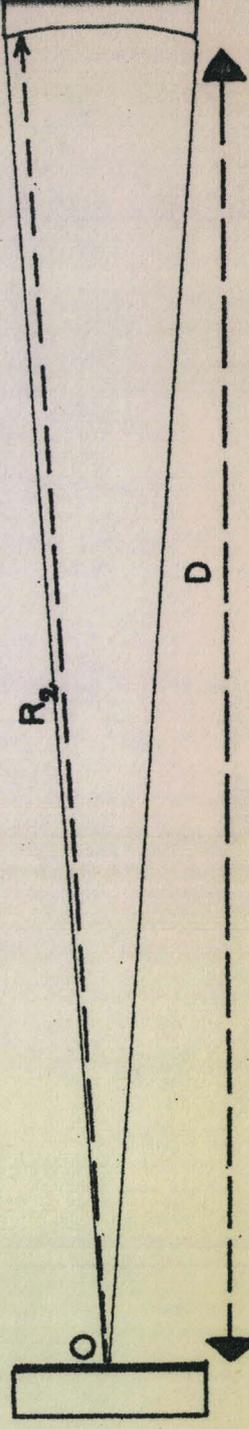


Montage

hémisphérique

$$R_1 = \infty$$

$$R_2 = D$$

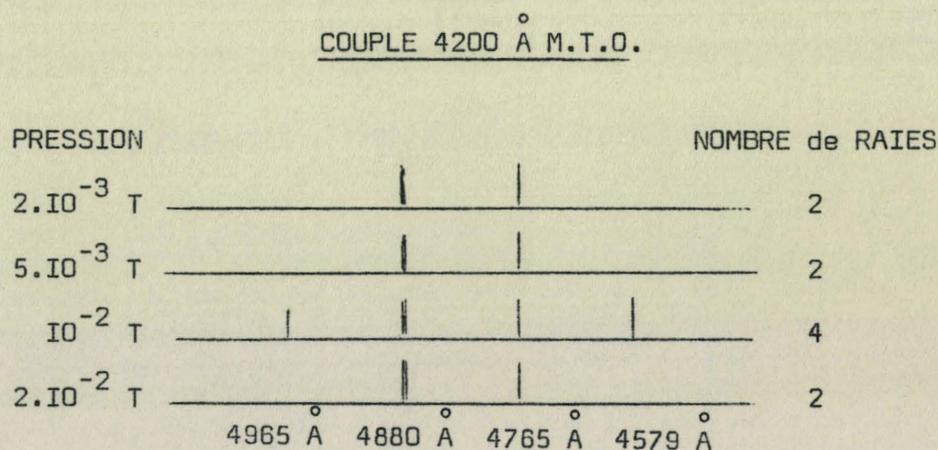


On peut d'ailleurs retrouver ces valeurs numériques en consultant les courbes de transmission des différents filtres (fig.I4).

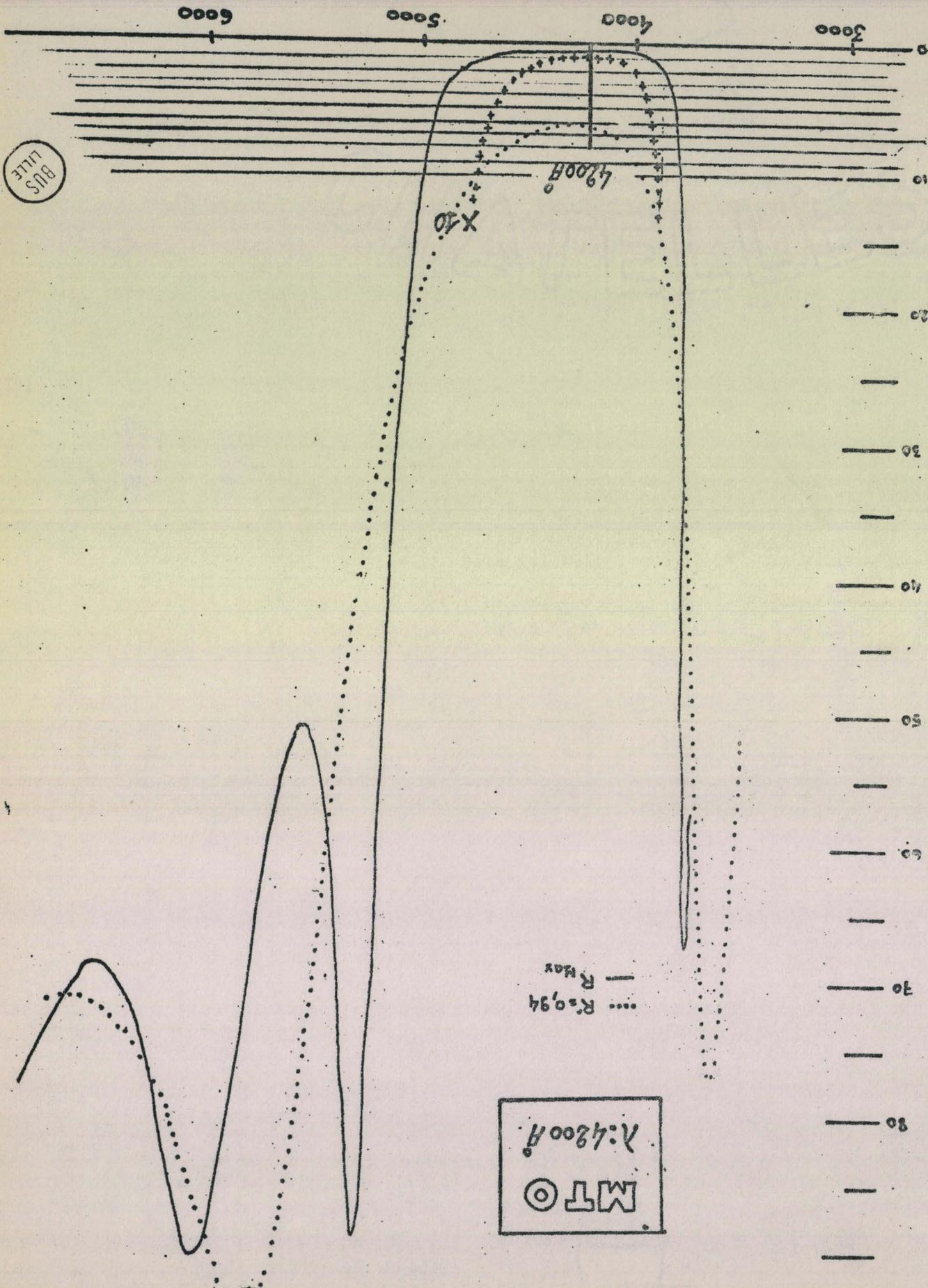
Tous ces miroirs ont été utilisés en configuration confocale leur rayon de courbure est égal à deux mètres, nous les avons placés à 1,75 m l'un de l'autre. Nous avons obtenu un rayonnement polychromatique à chaque expérience quel que soit le couple de filtres choisis.

#### D - ANALYSE du RAYONNEMENT STIMULE

Le faisceau laser a été analysé à l'aide d'un spectroscopie à prisme, celui-ci ayant été étalonné par les raies d'une lampe à Zn, Cd, Hg. Nous avons directement observé l'apparition et la disparition de raies lors de la variation d'un paramètre expérimental. Une étude systématique a été pratiquée sur chaque rayonnement polychromatique pour différentes pressions, d'argon pur et pour chaque couple de miroirs. Chaque raie a été repérée à deux Angstroems près, chacune d'entre elles avait déjà été mise en évidence et interprétée. (9)  
(Bibliographie spéciale à la fin du §)



La raie 4880 Å est observée pour toute pression d'argon permettant une émission stimulée, elle est la plus intense.



Courbe de transmission des miroirs différents utilisés.

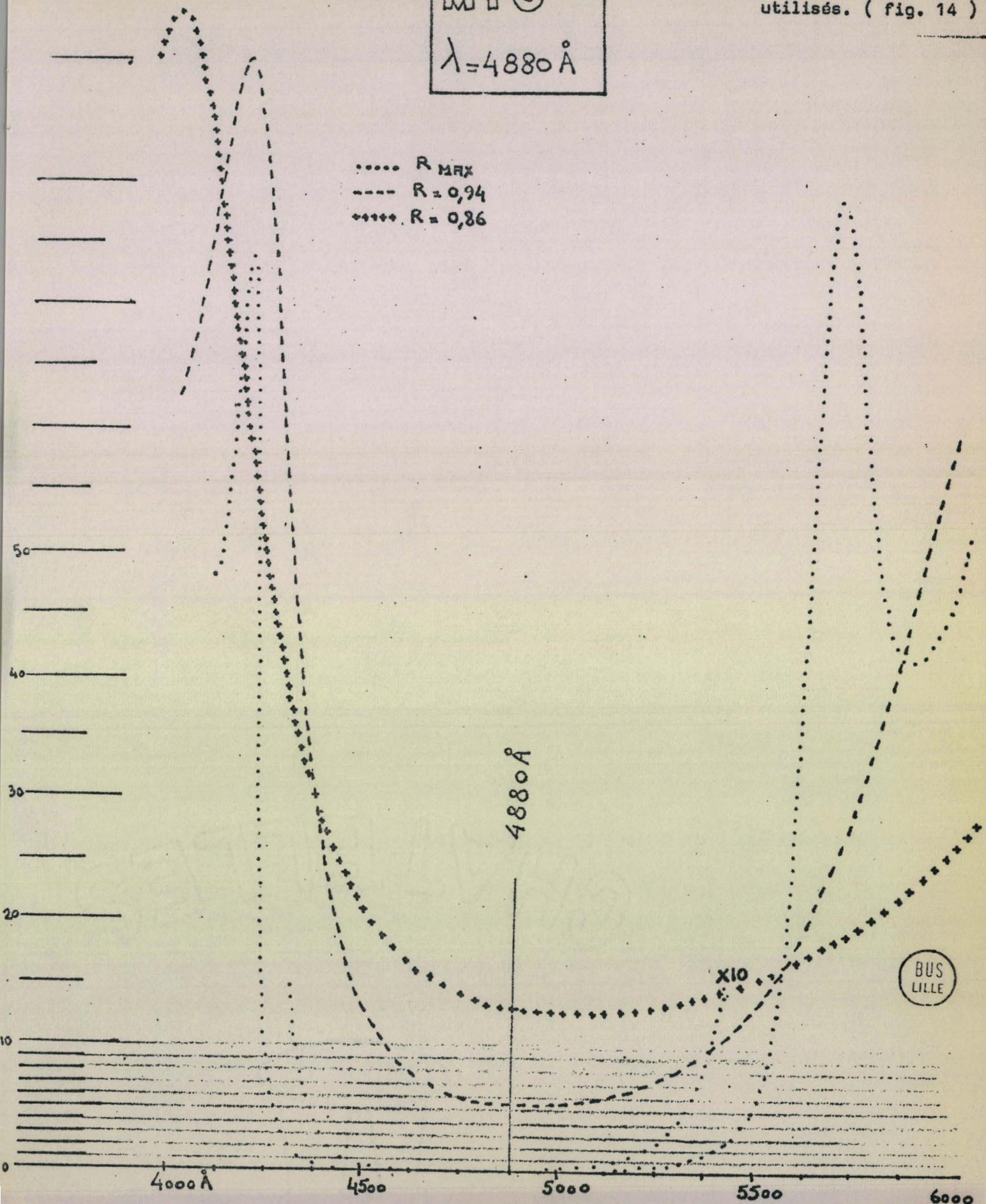
MTO  
 $\lambda: 4200 \text{ \AA}$

..... R 0,94  
 ——— R Max

BUS  
 LITE

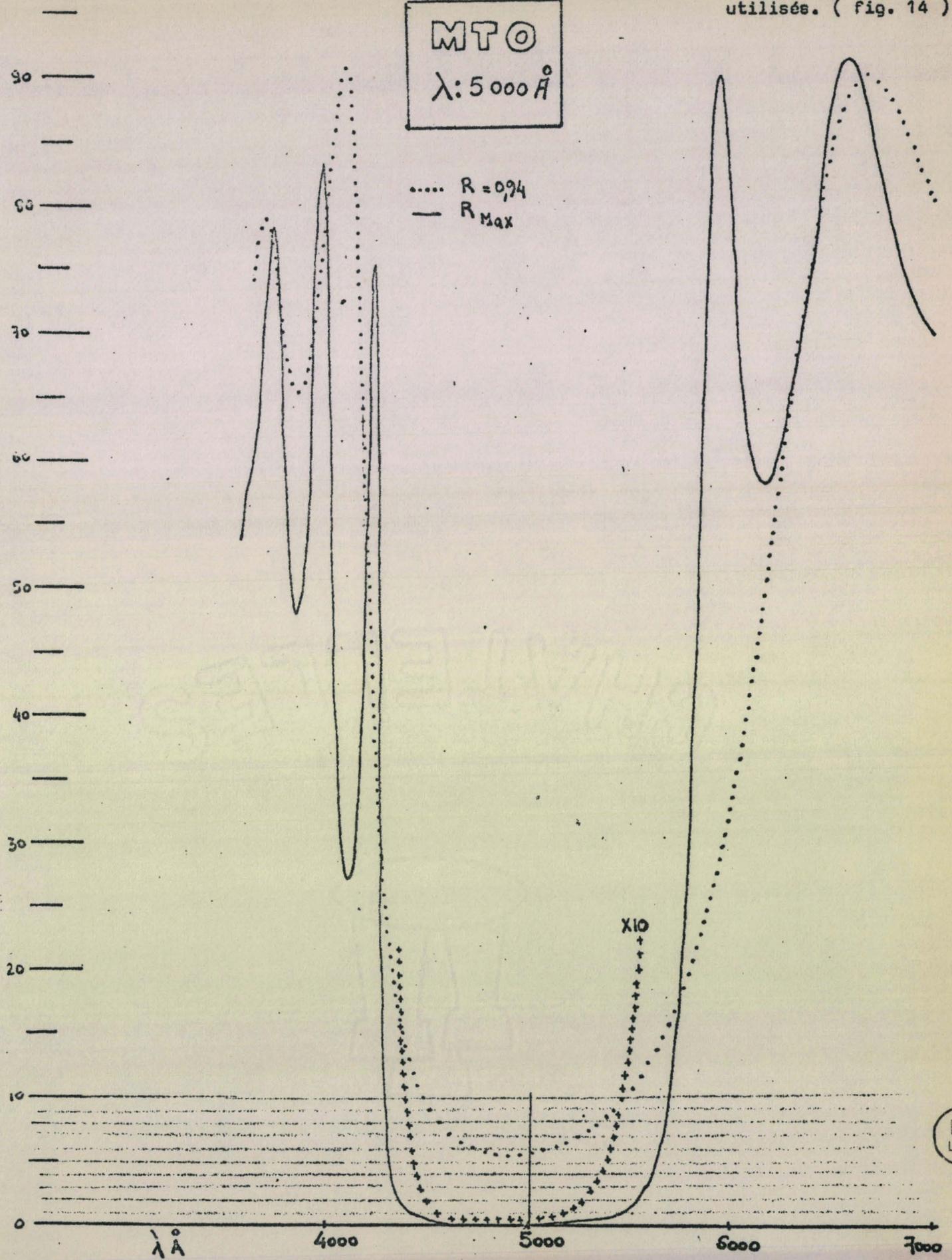
MTO  
 $\lambda = 4880 \text{ \AA}$

..... R<sub>MAX</sub>  
 ---- R = 0,94  
 +++++ R = 0,86



MTO  
 $\lambda: 5000 \text{ \AA}$

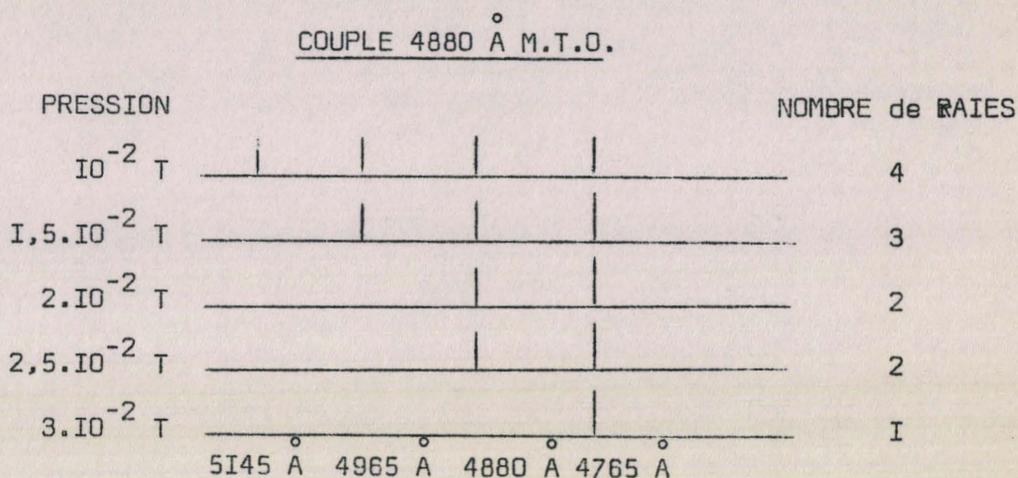
..... R = 0,94  
— R<sub>Max</sub>



La raie 4765 Å a une intensité maximum pour une pression  $p = 10^{-2}$  T.

La raie 4965 Å est très faible.

La raie 4579 Å est observée pour un intervalle de pression  $\Delta p$  très faible.



Pour  $p = 10^{-2}$  T, on obtient 4 raies intenses. La première à disparaître est la 4965 Å, puis vient le tour de la 4765 Å. Au bout d'un certain temps de fonctionnement, seule la 4880 Å reste la plus intense.

Pour  $p = 1,5 \cdot 10^{-2}$  T, on obtient 3 raies intenses, comme précédemment, la 4965 Å est la première raie à disparaître suivie de la 4765 Å.

Pour  $p = 3 \cdot 10^{-2}$  T, seule la 4765 Å subsiste mais garde une intensité faible.

Il faut noter que l'extinction des raies ne constitue évidemment pas une caractéristique de l'effet laser, l'extinction correspond à un gain très faible pour la raie donnée, le seuil d'oscillation n'étant plus atteint lors d'une faible variation d'un paramètre expérimental (pression par exemple).

En conclusion, pour un couple de filtres donné, la pression d'argon détermine le nombre de raies observables. Si certaines radiations s'éteignent en cours d'expérience, on peut attribuer cette disparition à une variation de pression

dans le tube à décharge et à l'apparition de produits de pollution qui piègent les ions excités.

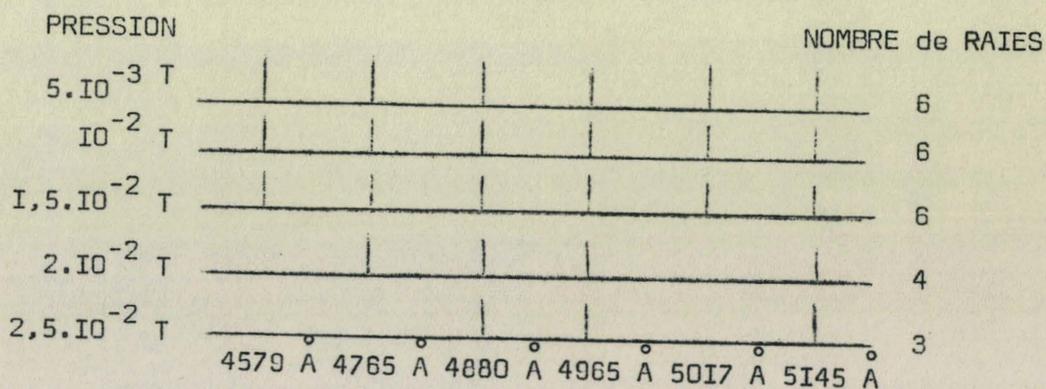
COUPLE 4880 O.I.P.

Il est possible d'observer pour  $p = 5.10^{-3}$  T des 6 raies du rayonnement stimulé polychromatique. Les deux nouvelles raies observées 4579 Å et 5017 Å ont d'ailleurs une durée de vie très courte et leur gain est très faible. Par la suite, et pour les autres pressions, ces filtres se comportent comme les précédents (COUPLE 4880 Å M.T.O.).

Par ailleurs, ce couple est de qualité inférieure au précédent ; l'intensité du faisceau laser obtenu est beaucoup plus faible, dans les mêmes conditions expérimentales de décharge (le coefficient de réflexion du filtre  $R_{\max}$  étant trop faible).

COUPLE 5000 Å M.T.O.

Ce couple de miroirs fournit le faisceau le plus intense.



Pour des pressions comprises dans l'intervalle  $5 \cdot 10^{-3}$  à  $1,5 \cdot 10^{-2}$  Torr, nous observons 6 radiations à fréquence de déclenchement de 1 Hz, à fréquence lente qui est celle utilisée lors d'études de spectres Raman, nous n'en observons plus que 4, à fréquence très élevée, seule la radiation  $4880 \text{ \AA}$  subsiste. C'est cette dernière qui a le gain le plus élevé ( $G > 15\%$  par m).

Pour des pressions comprises dans l'intervalle 1,5 à  $2 \cdot 10^{-2}$  Torr, nous observons 4 raies très intenses, seules les radiations  $5145 \text{ \AA}$  et  $4880 \text{ \AA}$  existent à fréquence de déclenchement élevée.

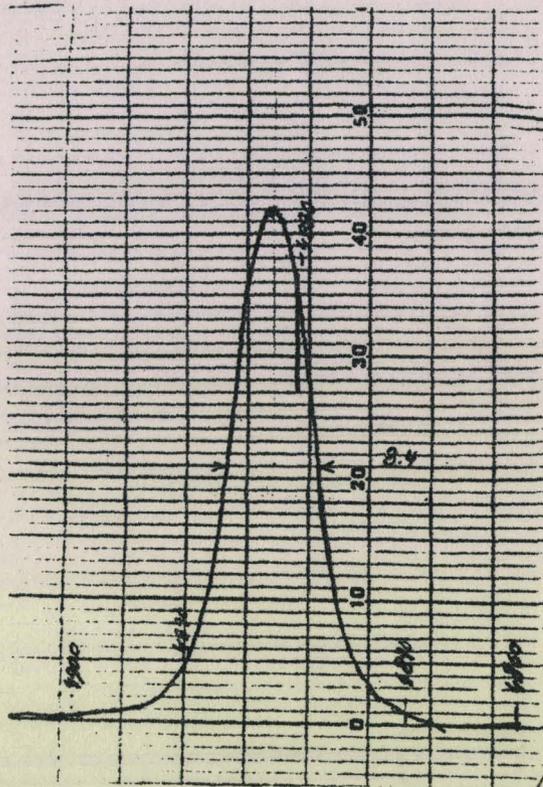
Nous avons ensuite monté "des couples mixtes" de filtres par exemple :

- $R_{\text{max}} 5000 \text{ \AA}$  et  $R_{0,86} 4880 \text{ \AA}$
- $R_{\text{max}} 4200 \text{ \AA}$  et  $R_{0,86} 4880 \text{ \AA}$

Les possibilités de permutation sont nombreuses. Celles-ci présentent l'avantage de fournir les mêmes raies mais avec des intensités différentes dans chaque cas. Il nous a donc paru intéressant de pouvoir faire varier la composition spectrale du rayonnement stimulé par ces permutations. Si les résultats actuels sont qualitatifs, ils permettent toutefois de définir les conditions optimales d'obtention d'une raie d'intensité relative élevée et constante.

#### CONCLUSION :

Il nous est apparu, à la suite de cette étude, que dans tous les cas, la raie de longueur d'onde  $\lambda = 4880 \text{ \AA}$  est observée ; c'est cette dernière qui a l'intensité la plus élevée et qui seule subsiste lorsqu'on augmente la fréquence de déclenchement dans le tube.



BUS  
LILLE

Courbe de transmission du filtre  
( fig. 15' )

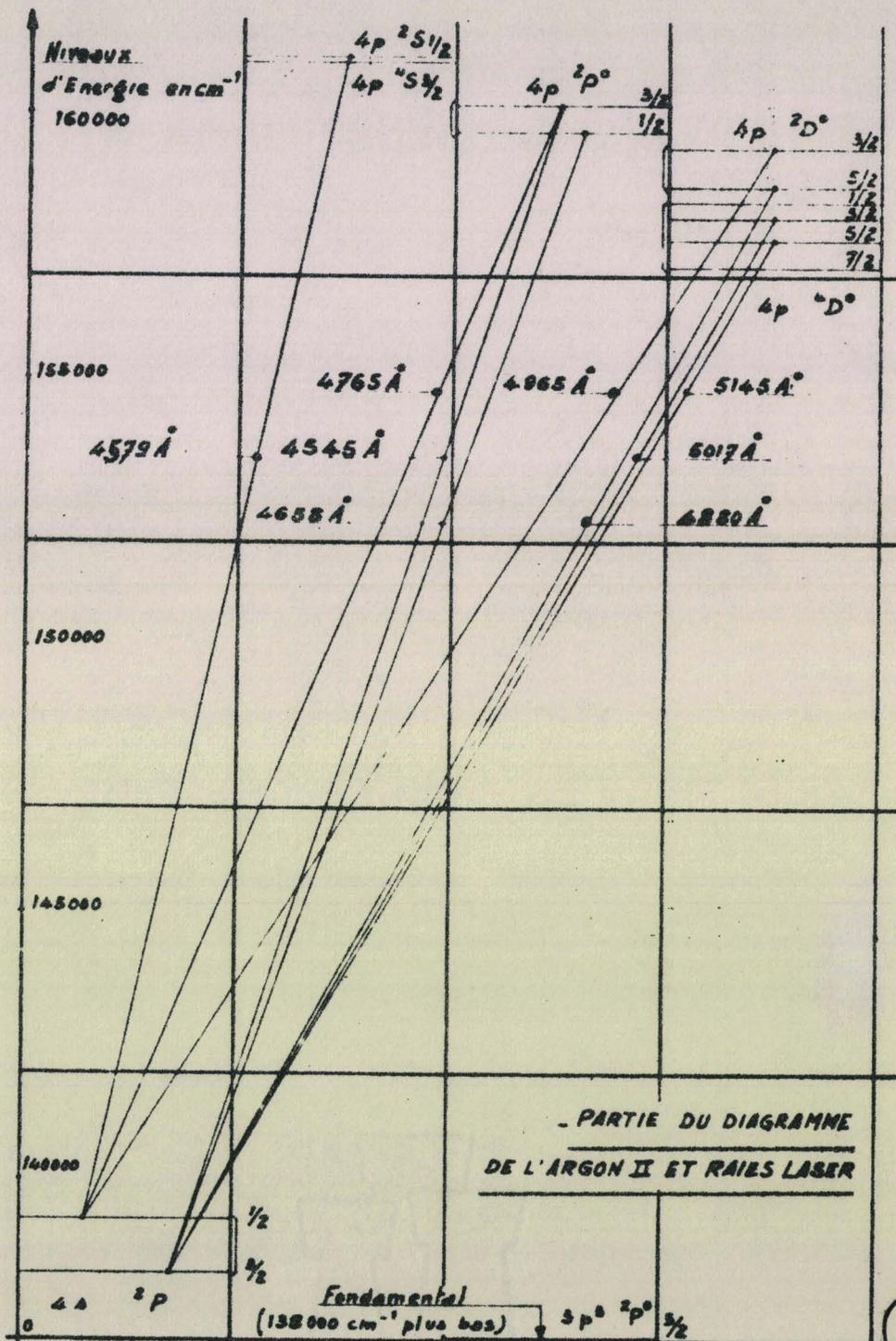
Dans les conditions optimales de travail nécessaires pour réaliser un spectre de diffusion Raman, les faisceaux de haute intensité étant polychromatiques, il s'imposait de placer entre le tube et l'échantillon un "filtre" de bande passante très étroite qui ne transmettrait que la longueur d'onde 4880 Å (courbe de transmission fig I5 bis). L'avantage immédiat est l'obtention d'un faisceau monochromatique mais dont la puissance est malheureusement réduite de 60 %.

Les raies observées ont été attribuées aux transitions suivantes :

(	:	:	:	)
(	:	:	:	)
(	1	: 4579 Å	: 4 p <sup>2</sup> S <sub>1/2</sub> <sup>o</sup>	→ 4 s <sup>2</sup> P <sub>1/2</sub>
(	:	:	:	)
(	2	: 4765 Å	: 4 p <sup>2</sup> P <sub>3/2</sub> <sup>o</sup>	→ 4 s <sup>2</sup> P <sub>1/2</sub>
(	:	:	:	)
(	3	: 4880 Å	: 4 p <sup>2</sup> D <sub>5/2</sub> <sup>o</sup>	→ 4 s <sup>2</sup> P <sub>3/2</sub>
(	:	:	:	)
(	4	: 4965 Å	: 4 p <sup>2</sup> D <sub>3/2</sub> <sup>o</sup>	→ 4 s <sup>2</sup> P <sub>1/2</sub>
(	:	:	:	)
(	5	: 5017 Å	: 4 p <sup>4</sup> D <sub>3/2</sub> <sup>o</sup>	→ 4 s <sup>2</sup> P <sub>3/2</sub>
(	:	:	:	)
(	6	: 5145 Å	: 4 p <sup>4</sup> D <sub>5/2</sub> <sup>o</sup>	→ 4 s <sup>2</sup> P <sub>3/2</sub>
(	:	:	:	)
(	:	:	:	)

#### • BIBLIOGRAPHIE des RAIES de l'ARGON IONISE

- 1 - MERCER - SUNDERLAND                      App. Phys. Letters 5,8 (15-10-64) I58-I60  
MERCER    App. Phys. Letters 4,10 (15- 5-64) I80-I82
- 2 - MERCER    App. Phys. Letters 4,10 (15-5-64) I80-I82  
Proc. I.E.E.E.                                      52-9 (1964)    I049-I050
- 3 - BRIDGES-CHESTER                              Nerem Record (1964) I06
- 4 - même source que 1 et 2
- 5 - même source que 1 et 2  
BENETT WR. Proc. of N.Y. Academy of Sciences . Symposium on the Laser.
- 6 - même source que 1, 2, 3, 4.  
G.CONVERT,AARMAND,P.MARTINOT-LAGARDE C.R. Acad.Sc.Paris,P.258 (4-5-64)  
(publication dont est extrait le diagramme de l'Argon II et raies Laser).



BUS LILLE

## A p p l i c a t i o n

INTRODUCTION

Les travaux réalisés, il y a une dizaine d'années au Laboratoire de Spectroscopie Raman de Lille permettaient de réaliser l'étude de systèmes chimiques en des temps inférieurs à la seconde (I0) (II). La mise au point par M.BRIDOUX (I2) de spectrographes Raman électrooptiques a permis ensuite l'analyse simultanée des éléments d'un spectre moyennement intense en un temps de  $10^{-3}$  seconde.

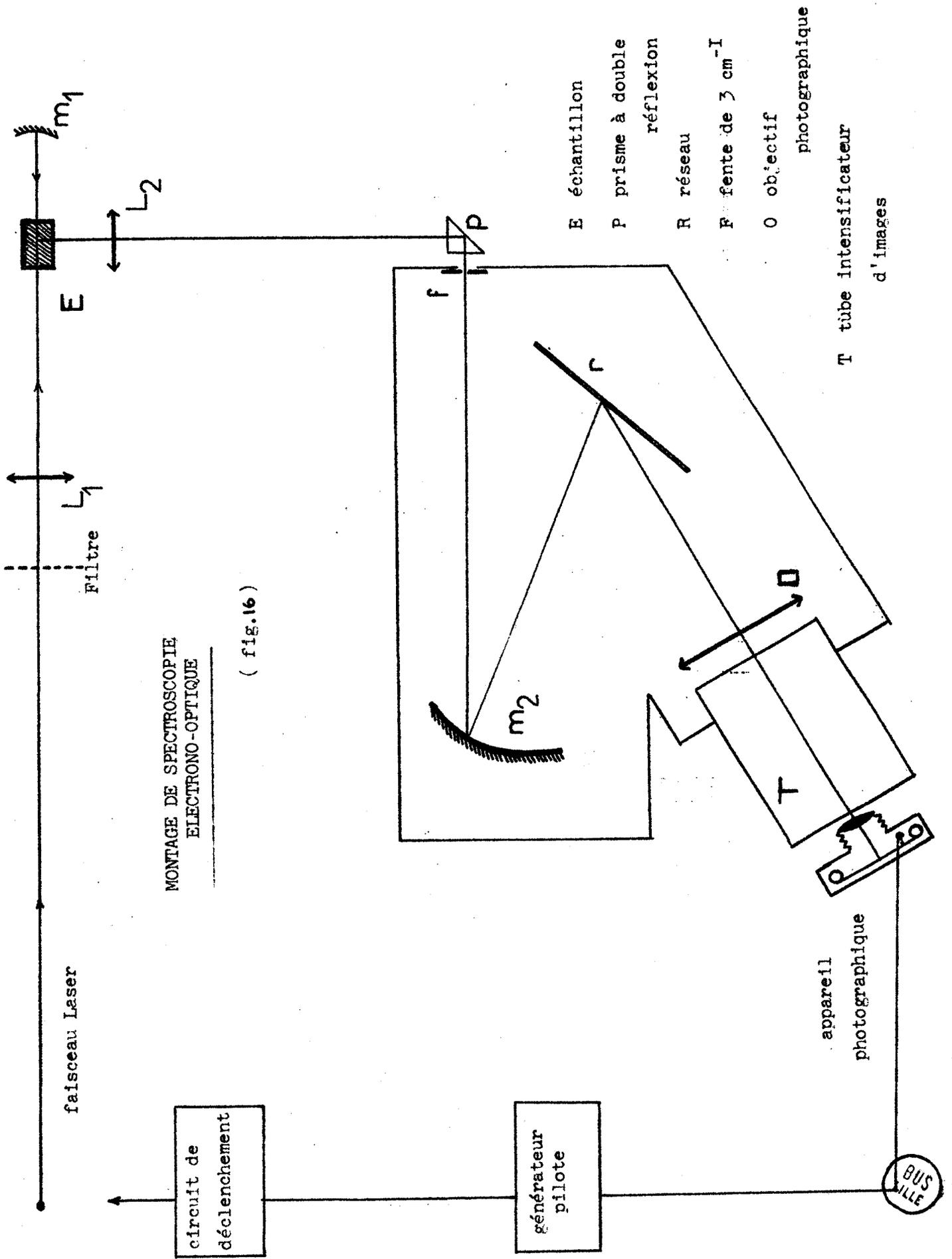
Le problème consiste à adapter la source excitatrice laser à gaz en impulsions à une installation de spectroscopie existante et d'obtenir le spectre d'un édifice moléculaire donné.

MONTAGE (Fig.I6)

L'installation de spectrographie électrooptique comporte :

- une source monochromatique : laser à argon ionisé  
(à cadence fixe - 50 Hz - T.R.W.)  
(à cadence variable)
- l'échantillon liquide placé dans une cuve.
- un spectrographe composé d'une fente d'entrée,  
d'un réseau à 1200 traits/mm  
d'un objectif photographique.
- un récepteur de rayonnement lumineux qui est un tube intensificateur d'images à dynodes multiplicatrices (tube P829D.EEV).

L'image (le spectre) observée directement sur l'écran fluorescent du tube intensificateur d'images est enregistrée soit par photographie, soit par une caméra de télévision (I3).



MONTAGE DE SPECTROSCOPIE  
ELECTRONO-OPTIQUE

( fig.16 )

- E échantillon
- P prisme à double réflexion
- R réseau
- F fente de  $3 \text{ cm}^{-1}$
- O objectif photographique

T tube intensificateur  
d'images

appareil  
photographique

BUS  
VILLE

APPLICATIONS de la SPECTROSCOPIE et RESULTATS

L'effet Raman met en oeuvre la vibration d'une molécule induite par le rayonnement incident excitateur. Le spectre Raman comprend la raie excitatrice de fréquence  $\omega$  et de part et d'autre, les fréquences  $\omega - \omega_m$  (raies stokes) et  $(\omega + \omega_m)$  (raies antistokes). Ces fréquences sont les somme et différence de la fréquence excitatrice et de la fréquence propre  $\omega_m$  de la molécule. Le laser ionique semble particulièrement adapté à l'étude de cet effet car les spectres obtenus sont très rapides, il nous a été possible d'enregistrer en  $3 \mu$  s le spectre complet de l'édifice moléculaire de  $\text{SnCl}_4 - \text{GeCl}_4$  (Fig.I7,I7').

On constate la présence de bruits non négligeables sur l'enregistrement photographique de la figure I8. Cette présence est due au fait que, dans un premier stade, nous ne disposions pas d'un dispositif qui permette de laisser l'obturateur ouvert seulement durant l'émission laser. Nous recueillons sur la plaque photographique l'ensemble du bruit du tube qui s'est manifesté durant 1 seconde.

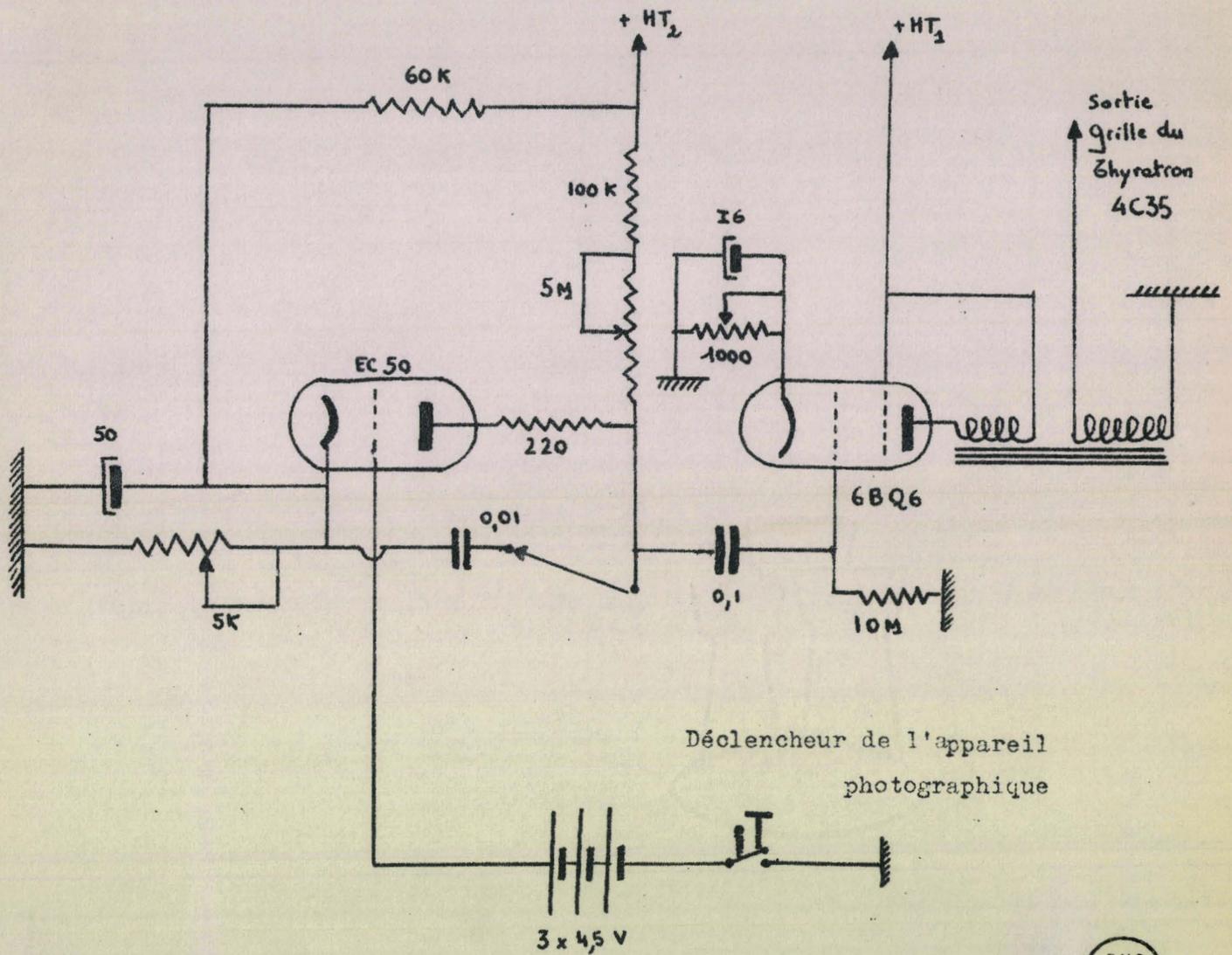
On obtient une amélioration très importante des clichés en synchronisant la source laser à la durée de déclenchement de l'obturateur photographique. Nous diminuons de la sorte le rapport temps de signal ( $3 \mu$  s) / temps de bruit ( 1 seconde), la fréquence de déclenchement est alors de 1 Hz.

Nous avons donc réalisé la synchronisation récepteur - source laser de la façon suivante : une impulsion positive de 13,5 V est directement envoyée lors du déclenchement de l'obturateur photographique, sur la grille d'un thyatron à Hélium EC 50 ; ce dernier devient passant et l'impulsion, après amplification, attaque alors la grille du thyatron à hydrogène 4C35 dans le circuit primaire du transformateur d'impulsions : une seule décharge se produit alors dans le tube, l'obturateur à rideau balaie le spectre entier en 1/60 de

de seconde. C'est dans cet intervalle de temps que "tombe" l'impulsion laser donc le spectre Raman.

Nous gagnons aussi un facteur 60 sur le rapport signal Bruit, dans l'enregistrement du spectre (Fig.I9) par rapport à l'exemple présenté fig. I7.

-----

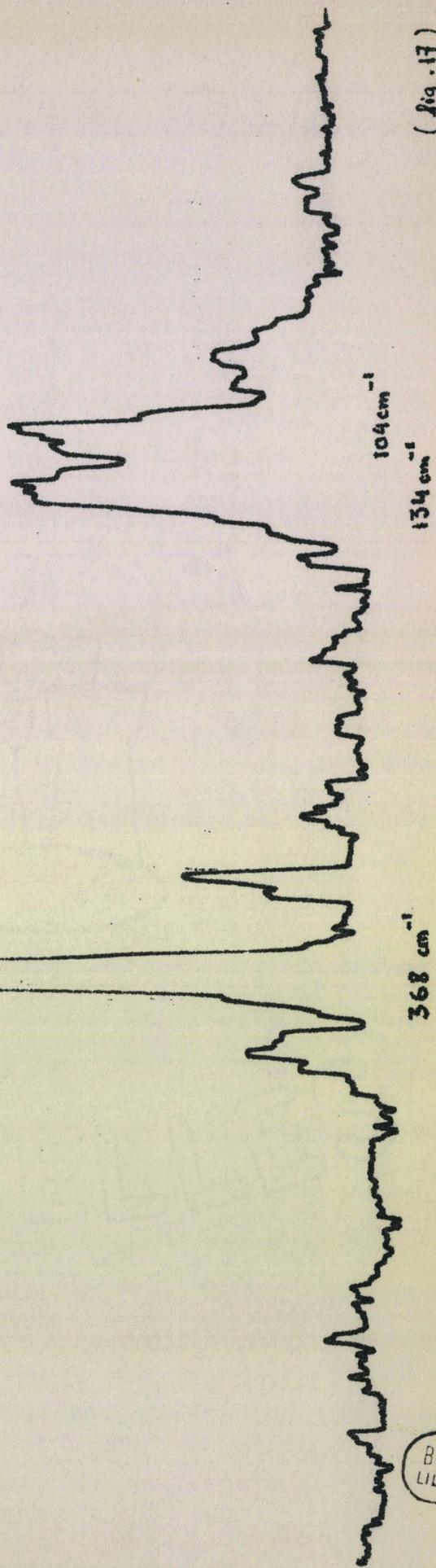


(fig. 19) - Obtention d'une impulsion laser synchronisée - avec le récepteur.

BUS  
LILLE

Spectre de  $\text{SnCl}_4$

obtenu en 3 impulsions Laser

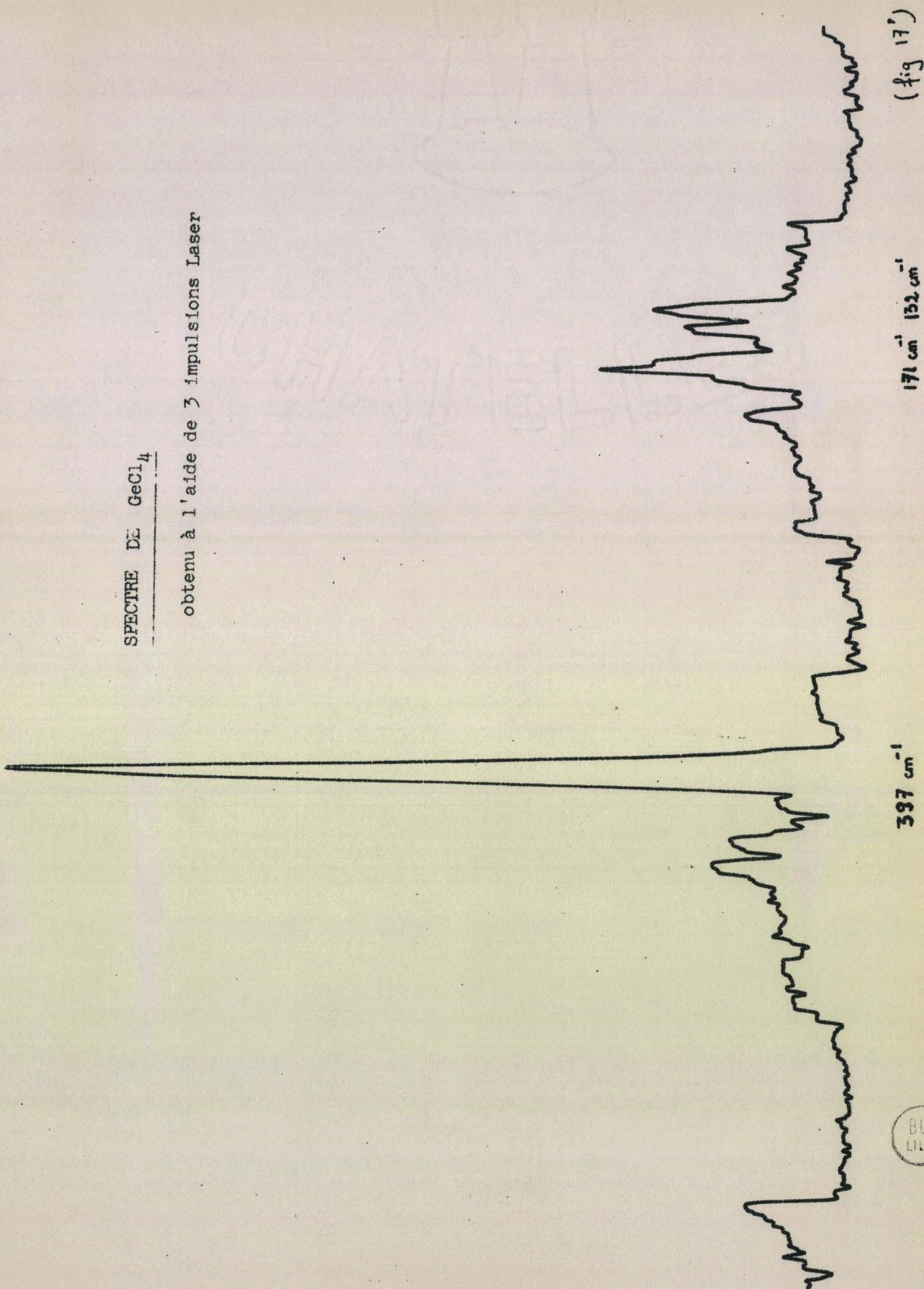


(fig. 17)

BUS  
LILLE

SPECTRE DE  $\text{GeCl}_4$

obtenu à l'aide de 3 impulsions Laser

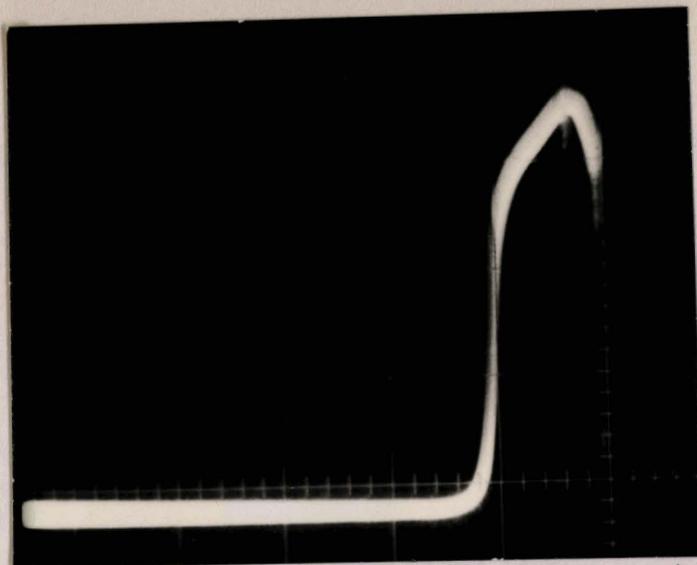


$397 \text{ cm}^{-1}$

$171 \text{ cm}^{-1}$   $152 \text{ cm}^{-1}$

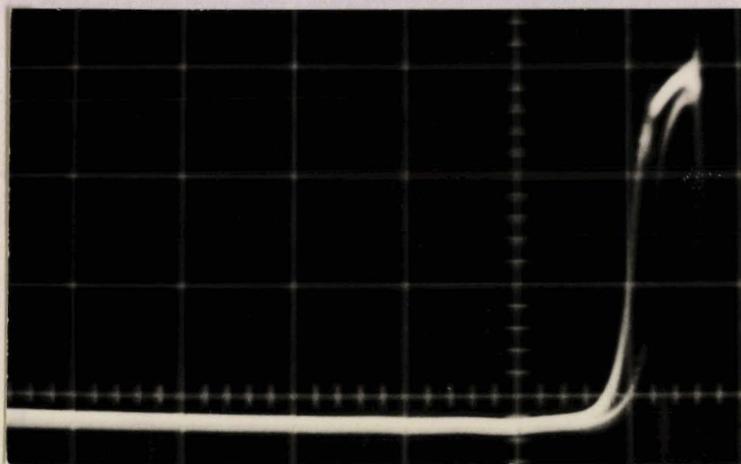
(fig 17)

BUS  
LILLE



Impulsion Laser

$$I_{cm} = 4 \mu s$$



Modification de la durée de l'impulsion Laser lors de la variation de la tension de décharge. La cellule est saturée.

$$I_{cm} = 4 \mu s$$

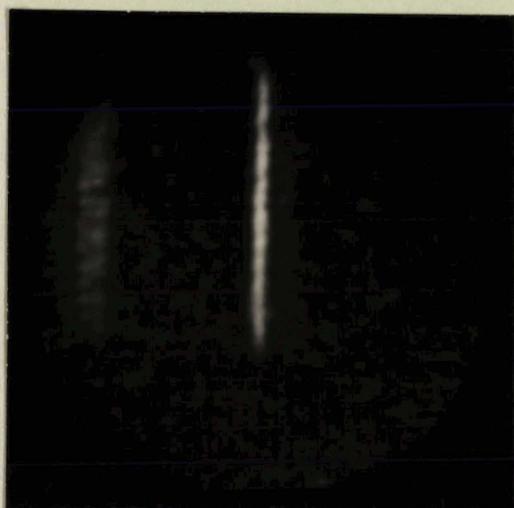


Image recueillie au tube intensificateur lors d'une excitation laser. Il s'agit du spectre de  $\text{SnCl}_4$ . On remarque le doublet à gauche et l'importance du bruit de fond pour une pose de 1 seconde.

(FIG. 18)

## C o n c l u s i o n

Nous avons porté toute votre attention sur la mise au point d'un laser à argon ionisé en impulsions dont la structure est utilisable pour d'autres gaz. Des améliorations des circuits électroniques permettront de modifier la forme et la durée des impulsions, afin d'obtenir des impulsions de plus courte durée.

Ce perfectionnement nous donnerait alors la possibilité d'enregistrer un spectre Raman en une microseconde.

Nous avons montré que l'enregistrement d'un spectre de durée de quelques microsecondes était parfaitement réalisable. Nous avons **observé un gain important,** par rapport aux résultats précédents (11) où les spectres rapides étaient obtenus à l'aide d'un laser à rubis délivrant des impulsions d'une milliseconde. Dans le cas des spectres de diffusion peu intenses, quelques impulsions lumineuses sont nécessaires pour obtenir un spectre Raman aisément exploitable. Une augmentation de la puissance de crête du laser en impulsions semble nécessaire et peut être obtenue par l'utilisation systématique d'un champ magnétique axial au tube à décharge à électrodes de Kovar.

Ce travail commence à être étendu à d'autres gaz rares. Nous savons qu'actuellement plus de 400 raies Laser (visible + U.V.) ont été mises en évidence. Il serait évidemment intéressant de disposer du grand nombre de raies stimulées du Kr, Xe, Hg comme source excitatrice, les puissances élevées que l'on peut espérer obtenir en impulsions, et courte durée d'enregistrement, ouvrent la voie à des études de cinétique chimique très rapide et à des études spectrales d'édifices moléculaires subissant des transformations rapides.

## BIBLIOGRAPHIE

- 1 - M.Y.BERNARD Maser et Laser  
P.U.F. p.53
- 2 - Lucien DANA Laser Ionique  
Revue "Atomes"
- 3 - LENGYEL Physique du Laser  
Ed. Eyrolles 1968, P.220, p.242.
- 3'- LENGYEL Physique du Laser
- 4 - M.DELHAYE Thèse Juin 1960, LILLE, p.54,55
- 5 - G.CONVERT, P.MARTINO-LAGARDE  
C.R.Acad. Sciences. PARIS 1964. ~~p.~~ mai 1964
- 6 - P.LAURES, L.DANA, C.FRAPPART  
C.R.Acad. Sciences, juin 1964, p.258.
- 7 - P.LAURES, L.DANA, C.FRAPPART  
C.R. Acad. Sciences, juillet 1964, p.259.
- 8 - E.B.BROWN Modern Optics (Reinhold, Publishing corporation)  
p.579.
- 9 - Laser- Lichtverstärker und Oszillatoren. p.522.  
D.Röb (Siemens Fachbücher 1965)
- 10 - M.DELHAYE, M.MIGEON, M.BRIDOUX  
22ème Symposium on Molecular Structure  
and Spectroscopy.
- 11 - M.DELHAYE COLOMBUS (OHIO) Spt.1967  
Molecular Spectroscopy (The Institute of Petroleum  
Congress of Brighton - Pâques 1968)
- 12 - M.BRIDOUX Thèse mai 1966, LILLE, p.7,17,55.
- 13 - M.BRIDOUX Revue d'Optique n° 8, août 67, p.389,416