

N° d'ordre : 964

50376
1982
7

50376
1982
7

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE 3^{ème} CYCLE

par

Jean WASCAT

ETUDE DE LA MONTEE EN OSCILLATION D'UN LASER SUBMILLIMETRIQUE OPTIQUEMENT POMPE



Soutenue le 22 avril 1982 devant la Commission d'Examen

Membres du Jury :	M. WERTHEIMER	Président
	M. GLORIEUX	Rapporteur
	M. DANGOISSE	Examineur
	M. LEMAIRE	Examineur
	M. VERON	Examineur

U.E.R. DE PHYSIQUE FONDAMENTALE

Ce travail a été effectué à l'UER de Physique Fondamentale de l'Université des Sciences et Techniques de LILLE, dans le Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne. Ce laboratoire associé au CNRS, est dirigé par Monsieur le Professeur WERTHEIMER qui a bien voulu me faire l'honneur de présider le jury. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde gratitude.

J'exprime toute ma reconnaissance à Monsieur le Professeur GLORIEUX qui a dirigé ce travail ainsi qu'à Monsieur DANGOISSE dont l'expérience et la compétence en ont rendu la réalisation possible.

Je remercie Monsieur VERON du CEN de Fontenay aux Roses, pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de juger ce travail.

Monsieur le Professeur LEHAIRE a éveillé en moi, l'intérêt pour la théorie des lasers, il me fait en plus l'honneur de se joindre au jury et je l'en remercie.

J'ai aussi beaucoup appris grâce aux membres du laboratoire et de l'UER au cours de discussions plus ou moins informelles et je les en remercie ici.

Je remercie enfin Madame BOERZ pour le soin apporté à la dactylographie de ce mémoire et Monsieur RAFFAUD pour la qualité de la reproduction des schémas et des figures.

Jean Wasé

S O M M A I R E

INTRODUCTION	1
PREAMBULE	3
0.1 Lasers Submillimétriques optiquement pompés	3
0.2 Caractéristiques de notre installation submillimétrique .	6
CHAPITRE I : ETABLISSEMENT DU REGIME D'EMISSION A L'EHELLE DE LA MILLISECONDE	15
I.1 Introduction	15
I.2 Analyse Théorique Simplifiée	18
I.2.I Modèle	19
<i>A Description</i>	19
<i>B Hypothèses</i>	21
<i>C "Rate Equations"</i>	25
I.2.II Résolution des "Rate Equations"	26
<i>A Simplification</i>	26
<i>B Résultats</i>	28
I.3 Expérimentation et Comparaison Expérience Théorie	31
I.3.I Dispositif Expérimental	31
<i>A Montage Expérimental</i>	31
<i>B Traitement des données expérimentales</i>	34
I.3.II Résultats Expérimentaux, Comparaison avec la théorie	35
<i>A Présentation</i>	35
<i>B Résultats et Commentaires</i>	39
CONCLUSION	48

CHAPITRE II : ETABLISSEMENT DU REGIME D'EMISSION A L'ECHELLE DE LA	
MICROSECONDE	51
II.1 Expérimentation	52
II.1.I Modulation Acousto-Optique	52
II.1.II Montage Expérimental	54
<i>A Modulation de la puissance de pompe</i>	54
<i>B Montage optique et électronique</i>	57
II.1.III Résultats Expérimentaux	59
<i>A Allure générale de l'émission SMM</i>	60
<i>B Délai et Temps de montée en oscillation</i>	68
II.2 Comparaison avec une théorie semi-classique du laser	76
II.2.I Théorie semi-classique du laser	77
<i>A Equations d'auto-cohérence</i>	77
<i>B Calcul de la polarisation</i>	80
<i>C Evolution temporelle du champ et de la fréquence d'oscillation</i>	83
II.2.II Comparaison Expérience Théorie	86
<i>A Gain linéaire global</i>	88
<i>B Intensité en régime stationnaire</i>	92
<i>C Délai et Temps de montée en oscillation</i>	101
II.3 Conclusion	106
CONCLUSION	113

I N T R O D U C T I O N

Les lasers submillimétriques pompés par laser CO_2 comblent une partie du besoin en sources cohérentes dans le domaine $100 \mu\text{m} - 1 \text{mm}$, bien que leur spectre d'émission soit discret. En effet, fonctionnant entre niveaux de rotations moléculaires, ils émettent sur des "raies" avec une gamme d'accord extrêmement restreinte ($\sim 10^{-6}$).

Cependant leur principal inconvénient réside dans la faible puissance émise, celle-ci étant habituellement inférieure au milliwatt. Ceci est lié bien entendu à la forte perte de conversion des photons infrarouges de pompage en photons submillimétriques. Mais la situation est encore aggravée par le mauvais rendement photonique de ces lasers qui est de l'ordre de 10% dans les meilleurs cas.

Alors que de très nombreuses publications rapportaient des listes de fréquences d'émission de multiples molécules présentant une bande d'absorption dans la gamme d'émission du laser à CO_2 , très peu s'attachaient à la compréhension des mécanismes mis en jeu dans le laser submillimétrique optiquement pompé. Pour la plupart, il s'agissait essentiellement de comparaisons entre les résultats (stationnaires) fournis par des modèles utilisant la "Rate Equation Approximation" et les variations observées de la puissance émise avec la puissance de pompe et la pression du milieu amplificateur [6]. Quelques groupes se sont aussi attachés à expliquer différents dédoublements apparaissant dans le mode d'émission de ces lasers [6].

Pour avoir une meilleure compréhension des effets limitant le rendement, nous avons entrepris une étude en temps résolu de l'émission d'un tel laser. Quand on applique rapidement le rayonnement de pompe, l'émission présente un certain nombre d'effets transitoires, avant d'atteindre son régime stationnaire. C'est la description phénoménologique, l'interprétation de certains de ces effets et leur modélisation qui fait l'objet du présent travail.

Dans une première série d'expériences, nous avons considéré l'évolution de la puissance émise à une échelle de la milliseconde. L'étude expérimentale de cette évolution a mis en évidence une décroissance exponentielle de la puissance émise, décroissance dont nous montrons qu'elle est liée aux possibilités de "refroidissements" des molécules pompées. En effet, après avoir ou non émis un photon, les molécules doivent encore perdre la majeure partie de l'énergie acquise lors de l'absorption d'un photon infrarouge avant de pouvoir être réintégréées dans le cycle de pompage.

Dans le but de préciser encore le fonctionnement de ces lasers, nous avons effectué une seconde série d'expériences, mais cette fois-ci à une échelle de la microseconde. L'observation de la dépendance temporelle de l'émission révèle alors toute une classe de phénomènes variés qui va de l'existence d'un temps de latence entre pompage et émission jusqu'à l'apparition d'une suroscillation à l'arrêt du pompage, en passant par divers comportements aperiodiques ou oscillatoires de la puissance émise. Cependant nous traiterons plus spécialement du délai ainsi que du comportement aperiodique qui sont bien décrits par une théorie semi-classique du laser.

Avant d'entreprendre la présentation des résultats obtenus dans l'un et l'autre cas, il nous a semblé intéressant de rappeler brièvement le principe de fonctionnement du laser submillimétrique optiquement pompé ainsi que de décrire les caractéristiques de l'installation submillimétrique dont nous disposons. Ceci fait l'objet du préambule tandis que les chapitres I et II sont relatifs respectivement à l'étude de l'émission à l'échelle de la milliseconde et de la microseconde.

P R E A M B U L E

I - LASERS MOLÉCULAIRES SUBMILLIMÉTRIQUES OPTIQUEMENT POMPÉS

L'effet laser dépend généralement de l'existence d'une inversion de population entre deux niveaux d'énergie d'une molécule (d'un atome, d'un ion ...). Cette inversion est susceptible de fournir par émission stimulée, un rayonnement de fréquence ν , proportionnelle à la différence d'énergie entre ces niveaux : $h\nu = E_i - E_j$. Cependant la transition n'aura effectivement lieu que si elle est permise par les règles de sélection de la molécule considérée ; les transitions dont nous parlerons dans la suite seront donc supposées permises.

Dans le cas des lasers submillimétriques moléculaires, l'émission provient généralement de transitions entre niveaux rotationnels de nombre quantique J moyennement élevé ($J \leq 30$). Une inversion de population peut être produite entre ces niveaux par pompage optique selon un processus explicité ci-dessous.

Considérons un gaz de molécules polaires possédant les niveaux de vibration $|V\rangle$ et $|V'\rangle$, $|V\rangle$ désigne l'état de plus basse énergie : généralement l'état fondamental de vibration ; les niveaux de rotation correspondants seront notés $|V,i\rangle$ et $|V',j\rangle$ (Fig.0.1). Dans les situations considérées dans ce travail, la différence d'énergie vibrationnelle entre les niveaux $|V\rangle$ et $|V'\rangle$ ($E_{V'} - E_V$) est nettement supérieure à l'énergie thermique kT . Au contraire, les différences d'énergie rotationnelles $E_j - E_i$ restent faibles devant kT . A l'équilibre thermodynamique, les niveaux $|V',j\rangle$ sont alors peu peuplés et leur populations respectives sont voisines.

Soumettons ce gaz à un rayonnement dont la fréquence est voisine de celle de la transition $|V,3\rangle \rightarrow |V',2\rangle$. Les molécules absorbent le rayonnement de ce champ de pompe et arrivent dans l'état $|V',2\rangle$ qui est donc

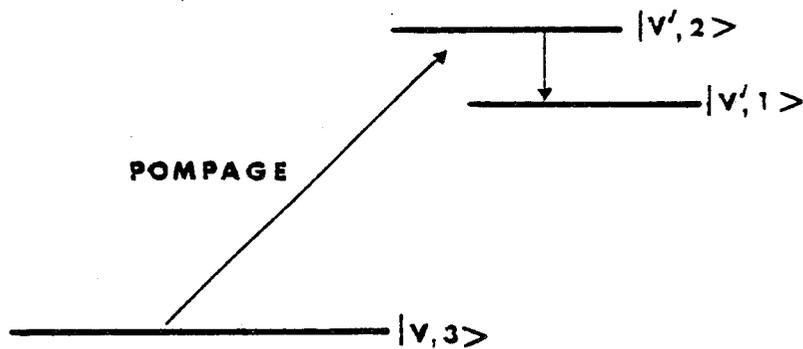


Figure 0.1 : Disposition des niveaux d'énergie

peuplé de façon sélective. La population de ce niveau est alors supérieure à celle des autres états de rotation adjacents $|v',i\rangle$: l'inversion de population est réalisée entre $|v',2\rangle$ et $|v',1\rangle$.

Si ce gaz se trouve dans une cavité dont les pertes à la fréquence considérée sont inférieures au gain du milieu amplificateur (le gaz irradié) une oscillation à la fréquence correspondant à la transition $|v',2\rangle \rightarrow |v',1\rangle$ peut prendre naissance dans cette cavité.

Le pompage optique des lasers submillimétriques est généralement réalisé avec un laser CO_2 ; celui-ci est employé pour ses bonnes caractéristiques de puissance et de stabilité, et aussi parce qu'un grand nombre de molécules ont des bandes fondamentales de vibration recouvrant la gamme d'émission de ce laser (9 - 11 μm).

Le caractère discret du spectre d'émission du laser CO_2 , allié à la nécessité d'une coïncidence entre fréquences de pompe et d'absorption, a amené les expérimentateurs à mettre en oeuvre des techniques diverses pour s'affranchir de ces limitations. Citons par exemple : l'emploi de

lasers en impulsion de plus en plus puissants (lasers TEA [1]), l'utilisation de l'effet Stark pour amener la transition d'absorption en résonance avec la raie de pompe [2], et plus récemment, l'utilisation de lasers CO₂ haute-pression, guide-d'onde, dont la gamme d'accord est plus étendue que celle des lasers continus couramment utilisés [3].

Le pompage peut être continu, c'est le cas des lasers usuels et guide d'onde. Il peut aussi être impulsionnel dans le cas d'utilisation de lasers TEA. Ces diverses techniques ont permis l'obtention de plus d'un millier de raies d'émission répertoriées dans des tables, dont la plus récente [4] comporte 1350 raies.

Depuis la découverte des lasers submillimétriques optiquement pompés, l'étude de ceux-ci a eu comme objectif principal la mise au point de sources de rayonnement dans le domaine submillimétrique, soit par la recherche de nouvelles émissions, soit par l'optimisation des techniques permettant d'obtenir ces dernières. Ce plus ces lasers ont aussi permis la mise au point de nouvelles méthodes spectroscopiques, un certain nombre de références concernant ces deux aspects sont rapportées dans la thèse de D. DANGOISSE [5].

Quant aux travaux théoriques sur ces lasers, la plupart sont consacrés à l'étude du gain et de la puissance émise en régime stationnaire [6], avec pour principal but l'explication du faible rendement de ce type de laser : la puissance émise observée expérimentalement, restant bien en deçà de la puissance maximale théorique

$$P_{\text{SMM}} = \frac{1}{2} P_{\text{IR}} \times \nu_{\text{SMM}} / \nu_{\text{IR}} \text{ où } P_{\text{SMM}}, \nu_{\text{SMM}} (P_{\text{IR}}, \nu_{\text{IR}}) \text{ désignent respectivement la puissance et la fréquence du rayonnement submillimétrique (du rayonnement infrarouge de pompe).}$$

En vue d'une description théorique des travaux relatés dans le premier chapitre de cette thèse, nous expliciterons au §I.2 de ce chapitre, le modèle le plus couramment utilisé et qui est dû à J.R. TUCKER [7].

II - CARACTÉRISTIQUES DE L'INSTALLATION SUBMILLIMÉTRIQUE

L'installation submillimétrique dont nous disposons dans le laboratoire, se compose d'un laser à gaz carbonique, source du rayonnement de pompe et d'une cavité où interagissent champs et molécules. Nous abordons dans ce qui suit la description des caractéristiques de ces deux éléments qui ont été construits au laboratoire.

1. LE LASER DE POMPE

Le laser CO_2 construit suivant une technique devenue classique pour ce genre de laser est constitué d'une cavité résonnante et d'un tube à décharge inséré dans la cavité. Ce laser est du type à écoulement, une pompe primaire à grand débit ($35 \text{ m}^3/\text{h}$) assure une circulation rapide du mélange gazeux (CO_2 , N_2 , He) dans le tube à décharge. Le fonctionnement de ce type de laser a été abondamment décrit dans la littérature [8] et nous n'y reviendrons pas ici.

La cavité se compose d'un élément dispersif : réseau Jobin Yvon 150 t/mm, utilisé dans l'ordre 1 et dans les conditions de Littrow, et d'un élément de couplage : miroir bi-concave semi-réfléchissant en ZnSe de rayon de courbure 10 m.

Le réseau monté sur un support orientable Micro-Contrôle est placé sur une platine goniométrique de grande précision. L'étalonnage de la platine et le repérage des raies du laser s'effectue à l'aide d'un monochromateur commercial "Optical Engineering".

Le pouvoir réflecteur du miroir (70%) permet d'obtenir une puissance de sortie de l'ordre de 20 W en fonctionnement monomode, monoraie, sur les raies les plus intenses. Cependant avec ce miroir, il est difficile d'obtenir une émission sur les raies de gain faible (R_0 , R_2 , etc ...). Pour ce cas, nous disposons d'un autre miroir de même géométrie mais dont le

pouvoir réflecteur supérieur (90%) permet, pour ces raies, l'obtention d'une puissance de sortie de quelques Watts.

La longueur de la cavité ($L = 1,5$ m) est stabilisée par une structure en Invar et l'intervalle spectral libre est de 100 MHz ($\Delta\nu = c/2L$). L'ajustement de la longueur de la cavité assurant la sélection des modes longitudinaux peut s'effectuer de deux manières :

- soit au moyen d'une céramique piézo-électrique sur laquelle est placé le miroir

- soit par un réglage manuel à vis agissant par déformation d'une plaque d'acier solidaire du support de miroir [9].

Le tube à décharge d'une longueur de 1,3 m et d'un diamètre intérieur de 12 mm est fermé à chacune de ses extrémités par une lame de ZnSe placée à l'incidence de Brewster. Le refroidissement du milieu amplificateur est assuré par une circulation d'eau.

La décharge dans le gaz s'effectue au moyen d'électrodes reliées à une alimentation pouvant débiter 80 mA sous 15 kV. Cette décharge est stabilisée par une régulation de l'intensité à mieux que 10^{-3} près, ceci afin d'éliminer les fluctuations dues aux variations des conditions de décharge (débits de gaz, etc ...).

2. LA CAVITE SUBMILLIMETRIQUE

La cavité submillimétrique dont nous disposons a été présentée en détail dans un travail antérieur [10] ; nous n'en donnerons ici qu'une description succincte.

a - DESCRIPTION

La cavité est un résonateur ouvert plan-concave, de type Pérot-Fabry, conçu de telle sorte que les rayonnements IR (infrarouge)

et SMM (submillimétrique) effectuent de multiples aller-retour.

Le résonateur se compose de deux miroirs en aluminium poli : un miroir sphérique de 14 cm de diamètre et de 3 m de rayon de courbure, un miroir plan de 10 cm de diamètre. La distance entre les deux miroirs est de 1,3 m.

Le miroir plan monté sur une platine de translation peut être déplacé par rapport au miroir sphérique ; la longueur de la cavité peut être ainsi ajustée pour obtenir l'accord sur une fréquence choisie. Le déplacement du miroir plan est repéré à l'aide d'une vis micrométrique, ceci permet la réalisation d'interférogrammes et donc la mesure de longueurs d'onde. La précision de la mesure ainsi réalisée est de l'ordre du micromètre.

Le miroir sphérique est percé en son centre d'un trou de 4 mm de diamètre permettant l'introduction dans la cavité du faisceau IR de pompe, ainsi que l'extraction d'une partie de l'énergie SMM présente dans la cavité.

Derrière le miroir sphérique, un dispositif de couplage assure la séparation des rayonnements IR et SMM ; celui-ci se compose d'un miroir incliné à 45° et percé en son centre d'un trou pour le passage du rayonnement de pompe. L'étanchéité du coupleur est réalisée par deux fenêtres : l'une en ZnSe traitée antireflet à 10 μm permet l'introduction du rayonnement IR tandis que l'autre en quartz ou en polythène, transparente uniquement au rayonnement SMM évite le retour de l'IR sur le détecteur.

La cavité est placée dans une enceinte à vide en Pyrex ; une installation à vide munie d'une pompe secondaire à diffusion d'huile permet d'atteindre dans l'enceinte une pression inférieure à 10^{-4} Torr. La pression optimale de travail, différente pour chaque émission est généralement comprise entre 10 et 150 mTorr. La mesure de cette pression est

réalisée soit par une jauge de Pirani étalonnée à partir d'une jauge à capacité "Datametrics", soit directement par cette jauge à capacité. Sans précaution particulière et compte tenu du matériel employé, la précision de mesure est habituellement de quelques mTorr dans le premier cas et de l'ordre du mTorr dans le second cas.

b - CARACTERISTIQUES

Nous donnons ici une description succincte de quelques caractéristiques du laser SMM ; elles seront utiles dans l'étude qui va suivre.

Extension des faisceaux IR et SMM dans la cavité

Le faisceau infrarouge introduit dans la cavité par le coupleur est focalisé dans celui-ci à l'aide d'un système de lentilles. Ce système permet de déplacer le point de focalisation dans le coupleur ainsi que l'étendue du faisceau en ce point : nous pouvons de ce fait contrôler et ajuster l'extension du faisceau de pompe dans la cavité. Pratiquement l'ajustement se fait de manière à maximiser la puissance SMM ce qui est habituellement réalisé lorsque le faisceau de pompe a une extension comparable à celle du mode SMM dans la cavité.

D'autre part en supposant que la géométrie du mode SMM de la cavité active est sensiblement identique à celle du mode de la cavité passive, l'extension du faisceau SMM se calcule aisément à partir de la taille w du faisceau sur les miroirs ; où w désigne le rayon où l'intensité vaut $(1/e)^2$ de l'intensité au centre du mode.

Sur le miroir plan w est minimal (noté w_0) et son expression est :

$$w_0 = \left(\frac{\lambda L}{\pi} \right)^{1/2} \left(\frac{R-L}{L} \right)^{1/4}$$

avec λ longueur d'onde du rayonnement SMM

L longueur de la cavité ($\sim 1,3$ m)

R rayon de courbure du miroir sphérique (3 m).

à la distance d du miroir plan, w s'exprime par :

$$w(d) = w_0 \left[1 + (\lambda d / \pi w_0^2)^2 \right]^{1/2}$$

La figure 0.2 représente en fonction de la longueur d'onde l'évolution de w_0 et $w(L)$. $w(L)$ est la taille du faisceau sur le miroir sphérique.

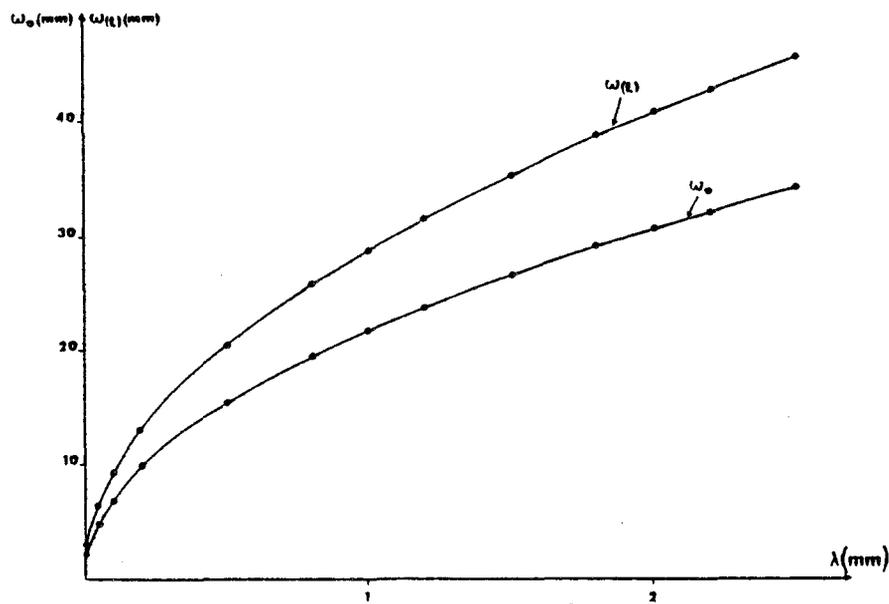


Figure 0.2 : Evolution du rayon du faisceau SMM sur le miroir plan (w_0) et sur le miroir sphérique ($w(L)$) en fonction de la longueur d'onde.
Longueur de la cavité $L = 1.3$ m

Pertes infrarouges

Si on essaie d'évaluer l'efficacité du pompage, il faut tenir compte pour le rayonnement infrarouge d'un certain nombre de pertes liées soit à la géométrie de la cavité, soit à la réflexion sur les miroirs.

Dans la configuration semi-confocale le rayonnement IR est refocalisé sur le trou de couplage après seulement deux trajets (aller-retour) dans la cavité : il est donc nécessaire de s'écarter de cette configuration pour éviter des pertes trop importantes. CHANG [11] a relevé pour une cavité du même type que la nôtre, le pourcentage de la puissance réfléchie hors de celle-ci en fonction du rapport L/R lorsque la cavité contient un gaz faiblement absorbant. Cette étude fait apparaître que dans ce cas la puissance minimale réfléchie hors de la cavité est de l'ordre de 50%.

D'autre part, lors de la réflexion sur les miroirs, une partie importante du rayonnement IR est diffusée à cause de la mauvaise qualité optique de la surface de ces miroirs.

L'importance de ces pertes fait que celles-ci sont presque toujours supérieures, à la limite égales, à celles dues à l'absorption du gaz. On peut alors considérer que la puissance IR dans la cavité n'est limitée que par les pertes dues aux réflexions et au couplage vers l'extérieur. Cette puissance est donc pratiquement indépendante de l'absorption ou d'une variation d'absorption du gaz. Cette approximation est d'autant meilleure que le milieu est plus faiblement absorbant ; elle est cependant valable pour la plupart des gaz utilisés tant que la pression de travail reste inférieure à 150 mTorr.

Pertes submillimétriques.

Le coefficient théorique de pertes par réflexion sur les miroirs, est toujours inférieur à 1%. Le coefficient de perte par diffraction peut être estimé en fonction du nombre de Fresnel de la cavité à partir des travaux de T. LI [12]. Il est au maximum de 4% pour une longueur d'onde de 2 mm, tandis que pour les longueurs d'onde comprises entre 0,1 et 1 mm celui-ci est de l'ordre des pertes par réflexion : c'est à dire inférieur à 1%.

Parallèlement à ces deux types de pertes, il ne faut pas négliger les pertes par couplage. Celles-ci peuvent être estimées grossièrement pour le mode TEM(0,0) dans l'hypothèse où l'existence du trou de couplage ne modifie pas trop la distribution d'énergie et que celle-ci est à peu près constante sur la surface du mode. Dans ces conditions, et pour un trajet, les pertes sont dans le rapport des surfaces du trou de couplage et du mode.

$$\alpha = a^2/w^2(L) \quad \text{où } a \text{ est le rayon du trou de couplage (4 mm)}$$

Pour $\lambda = 500 \mu\text{m}$, α vaut 0.01.

En résumé, le coefficient de pertes de la cavité est de l'ordre de 1% par passage dans l'intervalle spectral 0.1 - 1 mm.

Stabilité de l'émission SMM

La cavité SMM n'est pas stabilisée en longueur et une faible dérive d'origine thermique a pu être observée : celle-ci est de l'ordre du micromètre après une heure de fonctionnement. L'évolution de la longueur de cavité devient ensuite négligeable.

En fait, la stabilité en amplitude et en fréquence du laser SMM dépend essentiellement de la stabilité du laser de pompe. Si la puissance SMM émise est optimale lorsque le laser CO_2 est accordé au sommet de son profil d'émission, la stabilité n'est limitée que par la dérive thermique de la longueur de la cavité CO_2 . Cependant lorsque la coïncidence avec la raie d'absorption nécessite un certain décalage, le laser de pompe fonctionnant sur un bord de son profil d'émission est beaucoup plus sensible à toute fluctuation (courant de décharge, débit de gaz, vibrations ...). La stabilité est alors moindre et ne permet que des périodes de travail plus courtes.

Pour donner un exemple de la stabilité de l'installation, citons le cas de l'émission à $742 \mu\text{m}$ de l'acide formique HCOOH (9R40). L'écart entre fréquence d'absorption et fréquence centrale de la raie CO_2 est de 20 MHz et l'on observe habituellement une diminution de 20% par heure de la puissance émise.

D'autre part, l'installation complète est placée sur une dalle de marbre suspendue pneumatiquement. Ce dispositif dont la fréquence de résonance est voisine de 1 Hz, affranchit l'installation des vibrations mécaniques (vibrations du bâtiment, pompes à vide, ...).

CONCLUSION

Cette installation, complétée récemment par la construction d'un laser CO₂ haute pression [13] et celle d'un résonateur submillimétrique guide d'onde [14], a permis la réalisation de nombreux travaux dans des directions variées.

Plus d'une centaine d'émissions ont été observées et la plupart d'entre elles ont pu être mesurées par une méthode de battement. La précision atteinte est de l'ordre du MHz soit une précision relative de l'ordre de 10^{-6} . Ces mesures de fréquence sont fondamentales pour la détermination des nombres quantiques des raies d'émission.

Des expériences de résonances multiples sur le milieu actif d'un laser SMM ont également été réalisées : résonances IR - SMM - MW* et IR - SMM - RF. Ces travaux ainsi que les précédents sont rapportés dans la thèse de D. DANGOISSE [5].

Dans ce travail nous nous sommes attachés à un troisième type d'étude dirigé vers la compréhension des mécanismes intervenant dans l'établissement de l'oscillation SMM. Dans le chapitre suivant, nous rapportons l'observation de cet établissement à l'échelle de temps de la milliseconde.

* micro-onde

CHAPITRE I

ETABLISSEMENT DU REGIME D'EMISSION

A L'ECHELLE DE LA MILLISECONDE

I.1 INTRODUCTION (*)

L'observation de l'établissement de l'émission SMM après application du pompage IR fait apparaître une croissance rapide de l'amplitude suivie d'une décroissance lente. La figure I.1 en donne un exemple ; elle représente un enregistrement réalisé sur la raie à $733 \mu\text{m}$ de D_2CO (9P32). Cet enregistrement a été obtenu avec un montage expérimental que nous décrirons ultérieurement ; précisons cependant, que la partie croissante de l'émission est trop rapide pour être résolue par le dispositif utilisé. Elle sera étudiée en détail dans le chapitre II tandis que le présent chapitre est consacré à la décroissance temporelle lente de l'émission.

Les premières expériences réalisées ont montré que l'évolution temporelle de l'émission varie suivant au moins trois paramètres : la pression du milieu amplificateur, la puissance de pompe et l'accord de la cavité SMM, i.e. : la fréquence de l'émission d'une raie donnée. De la même façon, il semble que cette évolution soit fonction de la fréquence du rayonnement de pompe. Cependant les fréquences IR et SMM sont des paramètres difficilement mesurables dans notre montage expérimental et l'interprétation de leur influence est de ce fait rendue difficile. Une étude de l'évolution de la décroissance de l'émission en fonction de la puissance de pompe et de la pression du milieu amplificateur, permet cependant d'identifier sans ambiguïté l'origine de l'effet observé. Dans la suite

(*) Les principaux résultats de ce chapitre ont été rapportés dans un article intitulé : "Diffusion and Vibrational Bottleneck in Optically Pumped Submillimeter Lasers" [32]

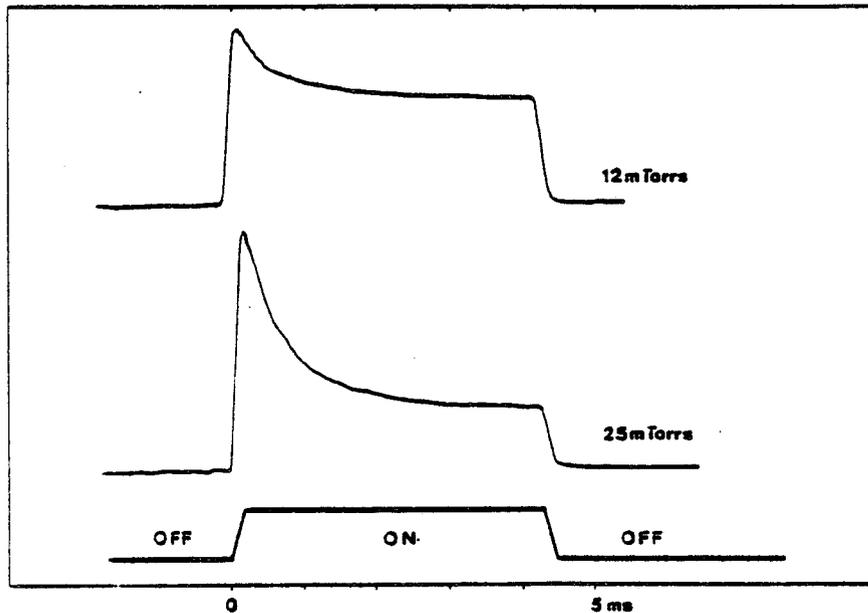


Figure I.1 : Evolution temporelle de l'émission à $733 \mu\text{m}$ de D_2CO après application du pompage. Le temps de montée de l'émission est limité par le temps de commutation du pompage.

de nos expériences, le laser CO_2 et la cavité SMM sont accordés de façon à obtenir une amplitude maximale de l'émission SMM.

Avant d'entreprendre une étude détaillée de cette décroissance, il semble intéressant d'essayer d'en déterminer l'origine. Signalons dès maintenant deux faits expérimentaux qui permettent d'entrevoir cette origine :

- Après application d'un pompage continu, il est possible d'observer une émission SMM transitoire pendant un temps de l'ordre de la milliseconde, alors que les conditions sont telles qu'aucune émission continue n'est observée.

- Les effets sont fortement dépendants de la pression et caractérisés par des temps de l'ordre de la milliseconde au voisinage de 100 millitorr (mTorr).

Ceci nous permet d'affirmer qu'après une phase initiale où le gain est élevé, celui-ci diminue et devient même parfois inférieur aux pertes. D'autre part, l'influence de la pression montre que cet effet est largement gouverné par les chocs moléculaires et l'échelle de temps indique qu'un phénomène qui devient prépondérant au bout d'un temps de l'ordre de la milliseconde est en cause. On peut alors penser à un effet d'engorgement vibrationnel car la constante de temps relativement grande de la décroissance implique un phénomène lent, tel justement la relaxation vibrationnelle.

De nombreux auteurs ont invoqué la lenteur de cette relaxation pour justifier le faible rendement du laser SMM moléculaire optiquement pompé. La constante de temps de cette relaxation est de l'ordre de la milliseconde à 1 Torr tandis que les autres processus de pompage et de relaxation rotationnelle ont une constante beaucoup plus petite : de l'ordre de 10 ns à 1 Torr pour la relaxation rotationnelle ($\Delta\nu \sim 20$ MHz/Torr). Ainsi lorsque le pompage est appliqué, de nombreuses molécules sont apportées dans un état vibrationnel excité, elles se répartissent rapidement dans l'ensemble des niveaux rotationnels grâce à une relaxation rapide et enfin, la lenteur de la relaxation vibrationnelle est telle que le niveau excité s'engorge.

Cet engorgement a pour conséquence une diminution de l'inversion de population, donc de l'émission si elle existe, par deux processus différents. D'une part, les nombreuses molécules présentes dans l'état excité ont tendance à se répartir suivant une distribution de Boltzmann amenant ainsi une diminution de l'inversion. D'autre part, l'engorgement du niveau excité fait que la population du niveau supérieur de la transition IR augmente tandis que celle du niveau inférieur de la même transition diminue à cause d'une relaxation "difficile". L'efficacité du pompage diminue donc, entraînant ainsi une réduction supplémentaire de l'inversion.

Le travail qui est rapporté dans ce chapitre présente la première mise en évidence expérimentale de cet effet. Nous avons pu montrer expérimentalement que la décroissance de l'émission est exponentielle de taux

unique Γ . On peut alors penser que ce taux est celui de la relaxation vibrationnelle. Cependant une analyse théorique est nécessaire qui nous permette de relier Γ aux différents paramètres de relaxation.

Le second point de ce chapitre est consacré à cette analyse théorique. Nous y montrons que la relaxation vibrationnelle n'intervient pas seule dans le taux de décroissance de l'émission. Il apparaît en effet un terme supplémentaire lié au temps de répartition des molécules dans les divers états rotationnels du niveau vibrationnel excité.

Les résultats de l'analyse théorique doivent être ensuite confrontés à ceux obtenus expérimentalement. Dans un troisième point, nous décrirons le montage expérimental qui nous a permis d'obtenir les résultats que nous comparons ensuite avec la théorie.

I.2 ANALYSE THÉORIQUE

Dans cette partie nous nous proposons de calculer de façon théorique la dépendance temporelle de l'émission SMM après application du pompage IR. Ce calcul nécessite le choix d'un modèle pour la représentation des différentes interactions entre les molécules et les rayonnements IR et SMM d'une part et pour les interactions entre molécules d'autre part.

Le phénomène que nous désirons décrire, la décroissance temporelle de l'émission, est lent. De plus, celui-ci commence environ 0,5 ms après application de la puissance de pompe. Ces deux remarques nous amènent à négliger a priori les phénomènes transitoires cohérents (nutations optiques ...) dont on peut raisonnablement supposer qu'ils sont complètement amortis au bout de quelques microsecondes aux pressions de travail utilisées.

Sur cette base, on peut alors se contenter d'une description semi-classique, macroscopique, de l'interaction entre les molécules et les champs : on néglige tout effet de cohérence (éléments non diagonaux de la matrice densité) pour ne considérer que les populations (éléments diagonaux de la matrice densité). C'est le cadre fourni par les "rate equations" qui ne sont que la traduction des échanges d'énergie entre les champs (IR et SMM) et les molécules via les populations des divers états d'énergie de la molécule.

Dans un premier point, nous présentons le modèle utilisé, voisin de celui introduit par J.R. TUCKER [7] pour décrire l'émission en régime semi-stationnaire du laser SMM optiquement pompé. Cette présentation s'effectue alors en trois temps. Un premier est consacré à la description succincte du modèle proprement dit. Dans un second temps nous nous attachons à dégager les hypothèses qui permettent d'obtenir dans un troisième temps les équations d'évolution des populations en présence des champs.

Les équations ainsi obtenues ne sont cependant pas solubles analytiquement. Dans un second point nous présentons alors une simplification possible de ces équations. Elle provient de considérations semi-quantitatives sur l'émission SMM et permet d'obtenir une expression analytique simple de la dépendance temporelle de l'émission SMM, expression que nous commentons brièvement.

I.2.I MODELE

I.2.I.A - DESCRIPTION

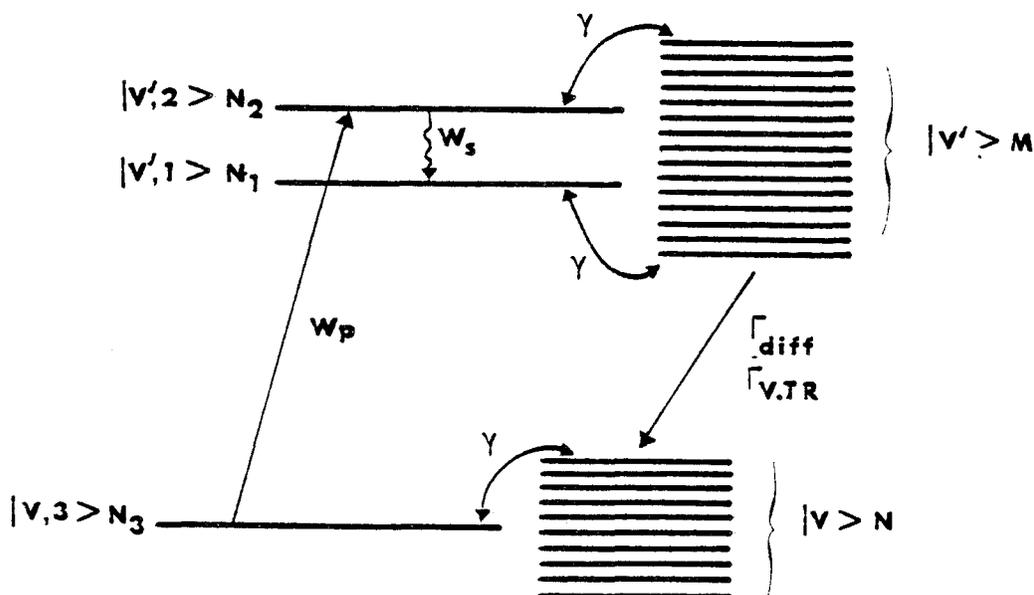
La figure I.2 représente le modèle utilisé, c'est un modèle à 3 niveaux couplés à deux réservoirs communicants.

- Les trois niveaux sont les niveaux de ro-vibration :

$|V,3\rangle$ niveau de départ de la transition IR
 $|V',2\rangle$ niveau commun aux transitions IR et SMM
 $|V',1\rangle$ niveau d'arrivée de la transition SMM

- Les deux réservoirs sont $|V\rangle$ et $|V'\rangle$ respectivement état fondamental de vibration et état excité.

Figure I.2 : Modèle utilisé pour la description du laser SMM optiquement pompé.



On suppose que tous les phénomènes non radiatifs, les désexcitations ont lieu à l'intérieur des réservoirs $|V\rangle$ et $|V'\rangle$ ou entre réservoirs. De ce fait :

$|V,3\rangle$ et $|V',2\rangle$ ne sont couplés de façon directe que par le champ IR
 $|V',2\rangle$ et $|V',1\rangle$ ne le sont que par le champ SMM
 $|V,3\rangle$ et $|V\rangle$; $|V',2\rangle$, $|V',1\rangle$ et $|V'\rangle$ sont couplés par la relaxation rotationnelle de taux γ .

$|V\rangle$ et $|V'\rangle$ sont couplés par la relaxation vibrationnelle (Γ) et par le champ IR par l'intermédiaire des niveaux $|V,3\rangle$ et $|V',2\rangle$.

Par la suite, on adoptera les notations suivantes :

- $n_i(v)dv$ représente la densité de molécules (m^{-3}) dans l'état ro-vibrationnel i , dont la composante de vitesse suivant la direction de propagation du rayonnement IR dans la cavité est comprise entre v et $v+dv$

- $N_i = \int_{-\infty}^{+\infty} n_i(v)dv$ représente la densité totale de molécules dans le niveau i

- $N_{ij} = N_i - \frac{g_i}{g_j} N_j$ est la différence de population entre les niveaux i et j , pondérée par l'inverse de leur dégénérescence g_i et g_j .

I.2.I.B - HYPOTHESES

Population

En absence de pompage et à la température ambiante, la population de l'état excité de vibration, est de l'ordre du centième de celle de l'état fondamental. On fera donc l'hypothèse qu'en absence de pompage seul l'état fondamental de vibration $|V\rangle$ est peuplé, la densité moléculaire correspondante est N_0 . Cette hypothèse n'apporte aucune restriction à la validité du calcul que nous effectuons par la suite.

En présence de rayonnement IR de pompe, $|V'\rangle$ est peuplé par absorption de ce rayonnement. Soit N , respectivement M , les densités de population de l'état fondamental $|V\rangle$ et de l'état excité $|V'\rangle$.

On ne tient pas compte d'absorption possible du rayonnement IR dans l'état excité. De même on néglige les possibilités de transferts vibrationnels entre états excités. Les seuls états peuplés sont donc $|V\rangle$ et $|V'\rangle$ et l'on a :

$$N + M = N_0$$

En présence de pompage, les collisions avec changement d'état rotationnel établissent un équilibre de Boltzmann parmi les niveaux rotationnels non connectés par les champs de chacun des états $|V\rangle$ et $|V'\rangle$. Pour ces niveaux, on écrira :

$$\begin{aligned} n_i(v)dv &= f_i N f(v) dv \text{ pour ceux de l'état fondamental} \\ &= f_i M g(v) dv \text{ pour les niveaux de l'état excité.} \end{aligned}$$

$f_i = Z^{-1} g_i \exp(-E_i/kT)$ est la probabilité d'occupation du niveau i et Z est la fonction de partition de l'état vibrationnel considéré
 $Z = \sum_i g_i \exp(-E_i/kT)$

$f(v) dv$ est la fonction de distribution des vitesses de Maxwell Boltzmann.

$f(v) = (\sqrt{\pi}u)^{-1} \exp-(v/u)^2$ où $u = (2RT/M)^{1/2}$ est la vitesse la plus probable, R la constante des gaz parfaits, T la température en degrés K et M la masse molaire.

$g(v)dv$ est une fonction de distribution corrigée en tenant compte du trou brûlé par le pompage dans la distribution de Maxwell-Boltzmann.

Transitions induites par les rayonnements

Il n'y a émission induite ou absorption de rayonnement que si la fréquence du rayonnement d'intensité $I(\nu)$ se situe à l'intérieur du profil de raie de la transition considérée. Le taux de transition correspondant s'écrit [6] :

$$W = \frac{c^2 A I(\nu)}{8\pi h \nu^3} g(\nu)$$

où $g(\nu)$ profil de raie est normé à l'unité : $\int_0^{+\infty} g(\nu) d\nu = 1$

et A est le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée relatif à la transition considérée.

On pourra trouver en [5], l'expression du taux de transition pour une molécule de vitesse v , dans les cas d'élargissement homogène ou inhomogène des transitions. Nous ne l'explicitons pas ici, nous

contenant de signaler que la transition de pompe présente généralement un élargissement Doppler, inhomogène alors que l'élargissement de la transition SMM est soit homogène, soit inhomogène suivant la fréquence d'émission et la pression du milieu amplificateur.

Désexcitation rotationnelle.

Les collisions intermoléculaires provoquent des changements d'état rotationnel à l'intérieur d'un état de vibration. Le taux de changement d'état rotationnel par collision est donné par $\gamma = 2\pi\Delta\nu$ où $\Delta\nu$ est la largeur collisionnelle (HWHM) de la transition considérée. Dans le cas des molécules polaires γ est de l'ordre de $10^8 \text{ sec}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$ ($\Delta\nu \sim 20 \text{ MHz/Torr}$).

On ne tiendra pas compte de la désexcitation rotationnelle par émission spontanée, en effet la durée de vie radiative moyenne des états rotationnels est de l'ordre de la seconde.

Désexcitation vibrationnelle

La désexcitation vibrationnelle Γ peut intervenir de deux manières : soit par thermalisation des molécules au cours de chocs avec les parois, soit par collisions intermoléculaires et transfert de l'énergie vibrationnelle en énergie de rotation et de translation. Dans le second cas $\Gamma_{V,TR}$ est de l'ordre de $10^3 \text{ sec}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$ tandis que les collisions désexcitantes sur les parois sont régies par les processus de diffusion.

La solution de l'équation de diffusion pour l'ensemble des états du niveau vibrationnel excité :

$$\frac{\delta M}{\delta t} = D \nabla^2 M$$

est, dans le cas d'un réservoir cylindrique dont la longueur est grande devant le rayon a

$$M(r,t) = J_0 \left(\frac{\mu r}{a} \right) \exp \left(- \frac{t}{\tau} \right) \quad (1)$$

$$\text{où } \tau^{-1} = \frac{\mu^2 D}{a^2}$$

μ est le premier zéro de la fonction de Bessel J_0 , et D est la constante de diffusion qui dépend de la pression p du gaz.

$$D = D_0/p$$

L'équation (1) n'est valable dans notre cas que si le mode fondamental de la cavité (le moins étendu) est considéré comme le mode principal de l'émission et si l'on néglige l'influence des effets longitudinaux [15]. Ces approximations ont été discutées en détail par MINGUZZI et al dans le cas d'atomes orientés [15]. La contribution de la diffusion à la relaxation est alors bien décrite par l'introduction d'un taux de désexcitation

$$\Gamma_{\text{diff}} = \frac{1}{\tau} = \frac{\mu^2 D_0}{p a^2}$$

Généralement D_0 est de l'ordre de $10^2 \text{ sec}^{-1} \text{ Torr cm}^2$ dans nos expériences.

Ce modèle de l'influence de la diffusion reste cependant très succinct car toutes les corrélations spatiales sont négligées ; par exemple les relations entre la section du faisceau de pompe, celle des modes transverses de la cavité SMM et la diffusion sont négligées. Cependant l'introduction de ces corrélations alourdit et complique énormément le modèle choisi pour l'émission SMM, dès lors on peut s'attendre à n'obtenir que des solutions numériques. Pour obtenir un modèle simple et qui reste soluble analytiquement, nous supposons donc que Γ_{diff} suffit pour décrire la contribution de la diffusion.

Le terme de désexcitation vibrationnelle Γ inclut donc les collisions intermoléculaires Γ_V et la diffusion Γ_{diff} de sorte que $\Gamma = \Gamma_V + \Gamma_{\text{diff}}$. On fait ici l'hypothèse supplémentaire que Γ_V est indépendant de l'état de rotation, la désexcitation vibrationnelle a alors lieu entre les réservoirs.

On peut remarquer de plus que Γ_V est proportionnel à la pression tandis que Γ_{diff} lui est inversement proportionnel. On peut donc distinguer deux zones de pression pour la relaxation vibrationnelle : l'une, à basse pression, où la diffusion l'emporte et l'autre, à haute pression où les collisions (Γ_V) prédominent sur la diffusion.

Changement de vitesse des molécules

Dans son modèle initial, J.R. TUCKER tient compte pour les niveaux couplés par le champ de pompe, d'un taux de redistribution des vitesses vers l'équilibre de Maxwell. P.R. BERMAN et al [16] ayant montré que la variation de la composante de vitesse v est très faible au cours d'un choc moléculaire ($\sim 85 \text{ cm}\cdot\text{sec}^{-1}$), l'échelle de temps des phénomènes observés permet alors de négliger ce taux.

I.2.I.C - "RATE EQUATIONS"

Nous pouvons maintenant écrire les équations bilan des transferts d'énergie entre niveaux. Ces équations régissent l'évolution des populations en régime quasi-stationnaire. Pour cela nous faisons deux hypothèses supplémentaires :

- les taux de relaxation rotationnelle des niveaux $|V',1\rangle$, $|V',2\rangle$ et $|V,3\rangle$ sont identiques, de valeur γ , indépendant^{*} de la vitesse des molécules
- la relaxation vibrationnelle est indépendante des niveaux rotationnels et est décrite par un taux unique Γ couplant $|V\rangle$ et $|V'\rangle$.

Les taux de transition associés à l'absorption IR et à l'émission SMM sont notés $W_p(v)$ et $W_s(v)$. Ces taux sont fonction respectivement de I_{IR} intensité du rayonnement IR de pompe et de I_{SMM} intensité du rayonnement SMM.

On obtient alors le système suivant où l'on a noté $\dot{n}_i = d n_i / dt$

* Mattick et al (Appl.Phys.Lett. 23, 675 (1973)) ont montré que pour les collisions $\text{NH}_3\text{-NH}_3$, γ était pratiquement indépendant de la vitesse.

$$\dot{n}_3(v) = n_{23}(v) W_p(v) + [f_3 N f(v) - n_3(v)] \gamma$$

$$\dot{n}_2(v) = -n_{23}(v) W_p(v) - n_{21}(v) W_S(v) + [f_2 M g(v) - n_2(v)] \gamma$$

$$\dot{n}_1(v) = n_{21}(v) W_S(v) + [f_1 M g(v) - n_1(v)] \gamma$$

$$\dot{M} = -\Gamma M - \int_{-\infty}^{+\infty} n_{23}(v) W_p(v) dv$$

Pour décrire de façon complète l'évolution du système total "molécules-champs", il faut adjoindre à ces relations deux équations supplémentaires relatives à l'évolution de I_{IR} et I_{SMM} . Ceci nous conduit à un système différentiel non linéaire du 1er ordre. Cependant des hypothèses supplémentaires justifiées dans notre cas, permettent d'une part de supprimer les équations en I_{IR} et I_{SMM} et d'autre part de simplifier le système précédent qui devient alors soluble analytiquement. Elles sont précisées dans le paragraphe suivant.

I.2.II RESOLUTION DES "RATE EQUATIONS"

I.2.II.A - SIMPLIFICATION

Les équations précédentes décrivent l'évolution des populations en régime semi-stationnaire et l'on peut considérer que nous sommes dans ce cas puisque nous atteignons lentement un état d'équilibre. De la même façon, la lenteur de l'évolution nous permet de considérer les champs en équilibre constant avec la cavité et les populations. Cette approximation est analogue à l'élimination adiabatique des variables évoluant rapidement qui est utilisée en théorie du laser contenant un absorbant saturable [17]. Dans notre cas, elle se traduit de deux façons différentes suivant le champ considéré IR ou SMM.

Pour le champ IR, étant donné le taux de perte important de la cavité à ces fréquences, (cf préambule), on peut le considérer comme peu

dépendant des variations lentes de population. On supposera donc l'intensité de pompe constante et donc W_p aussi.

Quant au champ SMM supposé suivre adiabatiquement l'inversion de population n_{21} , il peut être représenté par une grandeur proportionnelle à cette inversion. D'autre part on peut aussi considérer la perturbation induite par ce champ sur les populations comme négligeables par rapport aux autres causes de variation de ces mêmes populations. On négligera alors dans les équations, tous les termes en W_S .

En toute rigueur, cette approximation n'est pas valable dans le cas de champs intenses où W_S est du même ordre que γ . L'utilisation de cette simplification revient à dire que nous nous plaçons dans le cas d'un champ SMM faible. Cependant nous pouvons considérer ce champ comme généralement faible compte tenu du mauvais rendement du laser SMM et des faibles densités de puissance réalisées.

Les hypothèses précédentes nous permettent de linéariser le système étudié. Dans ce système la dépendance des populations avec la vitesse subsiste, cependant compte-tenu du faible taux de redistribution des vitesses, il n'y aura d'inversion que pour les classes de vitesse telles que $W_p(v)$ soit non négligeable. On peut alors supprimer la dépendance en vitesse en ne considérant dans N_0 que les molécules appartenant aux classes de vitesse concernées et en introduisant pour ces classes un taux moyen de transition W . La largeur de ces classes de vitesse sera alors déterminée par celle du trou brûlé par le rayonnement de pompe dans la distribution de vitesse. Pratiquement, la largeur relative est égale au rapport des largeurs homogène et Doppler de la transition infrarouge.

Toutefois ceci n'entraîne qu'une diminution du nombre initial de molécules N_0 et nous n'en tiendrons pas compte puisque ceci ne fait que modifier la valeur du coefficient de proportionnalité du champ SMM à l'inversion de population.

D'autre part, on peut déjà remarquer que les hypothèses précédentes se justifient a posteriori. En effet, elles permettent une linéarisation du système d'équations et nous avons vu (cf introduction) que la décroissance de l'émission est exponentielle de taux unique.

Compte tenu des remarques précédentes, on obtient le système (2) :

$$\begin{aligned}\dot{N}_{23} &= - (2W + \gamma)N_{23} + \gamma (f_2 + f_3)M - \gamma f_3 N_0 \\ \dot{N}_{21} &= - WN_{23} - \gamma N_{21} + \gamma (f_2 - f_1)M \\ \dot{M} &= - \Gamma M - WN_{23}\end{aligned}\quad (2)$$

I.2.II.B - RESULTATS

Hors de la gamme de temps des transitoires cohérents ($\sim \gamma^{-1}$) et pour des temps supérieurs au temps de réponse de la cavité SMM ($\sim 1\mu s$), la puissance SMM émise est suivant nos hypothèses, directement proportionnelle à l'inversion de population N_{21} . Cette dernière quantité s'obtient aisément en résolvant le système (2) et peut s'écrire

$$N_{21}(t) = P_0 + P_- \exp[-\Gamma_- t] - P_+ \exp[-\Gamma_+ t]$$

avec $2 \Gamma_{\pm} = (2W + \gamma + \Gamma) \pm [(2W + \gamma - \Gamma)^2 - 4 (f_2 + f_3)\gamma W]^{1/2}$

$$P_0 = \frac{N_0 f_3 W [\Gamma + (f_2 - f_1) \gamma]}{(2W + \gamma)\Gamma + \gamma(f_2 + f_3)W}$$

$$P_{\pm} = \mp \frac{N_0 f_3 W [\Gamma + (f_2 - f_1)\gamma - \Gamma_{\pm}]}{\sqrt{\Delta} \Gamma_{\pm}}$$

et $\Delta = (2W + \gamma - \Gamma)^2 - 4 (f_2 + f_3) \gamma W$

P_0 est l'inversion de population en régime stationnaire en présence de pompage IR. La dépendance temporelle de N_{21} donc de l'émission SMM est caractérisée par deux exponentielles de constantes de temps très différentes : comme $\Gamma \ll W, \gamma$, les quantités Γ_+ et Γ_- peuvent être écrites sous les formes approchées suivantes :

$$\Gamma_+ \approx (2W + \gamma)$$

$$\Gamma_- \approx \Gamma + \frac{(f_2 + f_3) \gamma W}{2W + \gamma}$$

$(\Gamma_+)^{-1}$ est une constante de temps rapide qui caractérise l'échange de population entre les niveaux 2 et 3. Au temps $t=0$, $N_{21}=0$; un court instant après, que l'on peut évaluer à $2(\gamma + 2W)^{-1}$ dans ce modèle, N_{21} est maximal et vaut environ $P_0 + P_- = P_+$ (car $P_0 + P_- - P_+ = 0$). Ensuite N_{21} décroît lentement avec une constante de temps $(\Gamma_-)^{-1}$ en relation avec le temps nécessaire pour l'établissement du cycle complet de pompage optique.

Rappelons que ce modèle a été établi en vue de rendre compte de l'évolution de l'émission après un laps de temps de l'ordre de 0,5 ms après application du pompage. Nous ne nous intéresserons donc pas à la constante Γ_+ décrivant la "montée en oscillation". D'autre part, ainsi que nous le verrons dans l'alinéa suivant, un temps de montée de l'ordre de γ^{-1} est beaucoup trop rapide pour être résolu par le dispositif expérimental. Nous porterons donc notre attention sur la décroissance lente de constante Γ_- .

L'expression de Γ_- comporte deux termes relatifs à deux phénomènes distincts contribuant à l'établissement du cycle pompage-émission. Le premier terme $\Gamma (= \Gamma_\gamma + \Gamma_{diff})$ décrit le refroidissement vibrationnel des molécules soit par collision sur les parois (Γ_{diff}) soit par collisions intermoléculaires (Γ_γ). Le second terme : $(f_2 + f_3) \gamma W (2W + \gamma)^{-1}$ est relatif aux transferts de population dans les différents états rotationnels des états de vibration.

Ce terme qui n'apparaît pas dans un modèle à trois niveaux traduit en fait le rééquilibrage des populations sous l'influence du pompage (W) et des collisions (γ). C'est une fonction croissante de W et γ , maximale lorsque la transition infrarouge est saturée; elle vaut alors $(f_2 + f_3)\gamma/4$ ($W = \gamma/2$ à la limite de saturation infinie). On peut donc remarquer que le rééquilibrage est d'autant plus rapide que le pompage est intense et/ou que la relaxation rotationnelle est rapide. De plus on voit ici que ce rééquilibrage est aussi fonction de f_2 et f_3 , probabilités d'occupation à l'équilibre thermodynamique des niveaux connectés par la transition IR. Dès lors, moins ces niveaux sont peuplés à l'équilibre thermodynamique plus l'équilibrage est lent; de la même façon, moins il y a de niveaux à équilibrer (i.e. f_2 et f_3 grands) plus l'équilibrage sera rapide ce qui est conforme à l'intuition.

L'expression de P_0 fournit une condition d'oscillation SMM en régime stationnaire. Cette condition $\Gamma + (f_2 - f_1)\gamma > 0$ est identique à celle obtenue dans des analyses précédentes des solutions en régime stationnaire [5]. La discussion de cette condition sera faite ultérieurement (cf I.3.II.B).

De l'expression de $N_{21}(t)$ on peut tirer une quantité qui peut être aisément comparée à l'expérience. Cette quantité est le rapport α de la valeur de l'inversion maximale à sa valeur en régime stationnaire, quantité équivalente selon nos hypothèses au rapport de l'amplitude maximale de l'émission sur celle du régime stationnaire. Ce rapport α s'écrit :

$$\alpha = 1 + \left(\frac{\Gamma_-}{\Gamma + \gamma(f_2 - f_1)} - 1 \right) \exp - \Gamma_- T$$

où T instant où l'inversion est maximale, a pour valeur $2(\gamma + 2W)^{-1}$. On a alors

$$\Gamma_- T \sim \frac{2(f_2 + f_3)\gamma W}{(\gamma + 2W)^2}$$

qui est de l'ordre de γ^{-1} , on peut alors faire l'approximation $\exp -\Gamma_T \sim 1$ ce qui donne une expression simple pour α :

$$\alpha \approx \frac{\Gamma_-}{\Gamma + \gamma(f_2 - f_1)} \approx \frac{P_+}{P_0}$$

Dans la zone de pression où la diffusion est dominante ($\Gamma_- \approx \Gamma_{diff}$), α tend vers l'unité tandis que sa valeur croît vers l'infini lorsque l'on atteint le seuil d'oscillation (en régime stationnaire) en haute pression ; dans cette limite P_0 tend en effet vers 0 tandis que P_+ a une valeur non nulle.

Ces divers résultats doivent maintenant être confrontés à ceux issus de l'expérience. C'est l'objet du paragraphe suivant.

I.3 EXPERIMENTATION

Le premier point de cette partie est consacré à l'obtention des résultats expérimentaux. Nous y présentons le montage expérimental et en discutons les limitations. Nous évoquons ensuite brièvement le traitement des données expérimentales permettant d'obtenir le taux de décroissance de l'amplitude de l'émission.

Dans un second point, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus et nous les commentons à la lueur de l'analyse théorique effectuée dans la partie précédente.

I.3.I DISPOSITIF EXPERIMENTAL

I.3.I.A - MONTAGE EXPERIMENTAL

Nous distinguons la partie optique : génération du rayonnement SMM, et la partie électronique : détection et traitement du signal SMM. Le schéma du montage réalisé est reproduit sur la Fig.I.3.

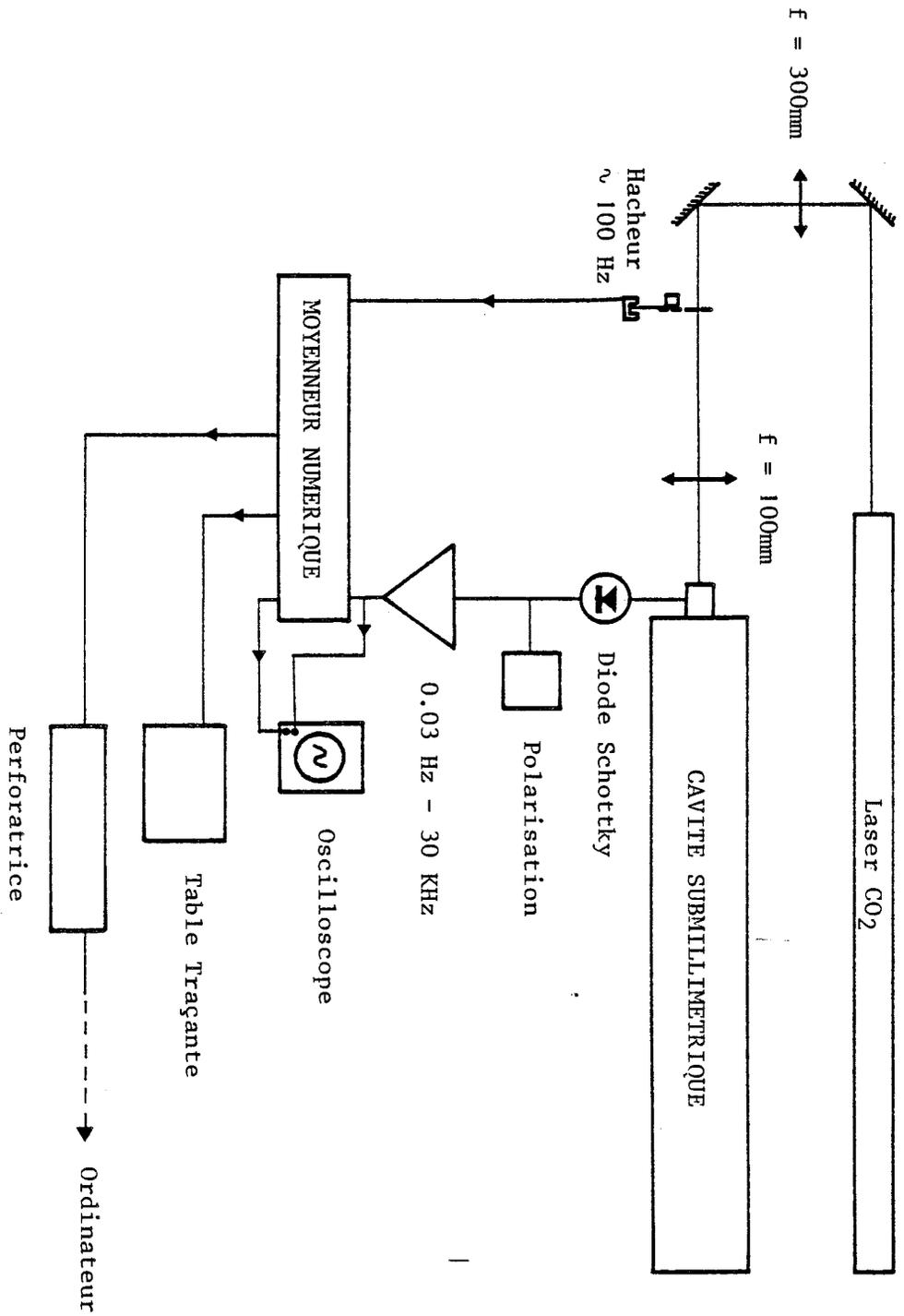


Figure I.3 : Montage expérimental

Montage optique

Le faisceau IR issu du laser CO₂ est introduit dans la cavité SMM à l'aide d'un jeu de miroirs et de deux lentilles. La puissance de ce rayonnement de pompe est mesurée à la sortie du laser CO₂ à l'aide d'un calorimètre "Cohérent Radiation"

Avant d'entrer dans la cavité SMM, le faisceau est modulé par tout ou rien au moyen d'un hacheur mécanique multipale. Le hacheur est placé entre les deux lentilles au point où l'extension du faisceau est minimale ($0,1 \text{ mm} < W < 0,5 \text{ mm}$). La fréquence de modulation est voisine de 100 Hz, le faisceau est alors ouvert (ou fermé) pendant un temps de l'ordre de 5 ms tandis que le temps de montée de la puissance IR, égal au temps mis pour découvrir le faisceau est d'environ 150 μs .

Le hacheur délivre de plus un signal de référence pris sur une pale distincte de celle coupant le faisceau IR ; ce signal de référence sert au déclenchement de l'électronique de traitement du signal SMM détecté.

Détection et traitement du signal SMM

Le rayonnement SMM issu du coupleur de la cavité est concentré sur une diode Schottky à l'aide d'un cornet métallique. La diode est montée sur un support "Custom-Microwave" à trois degrés de liberté en translation et un degré en rotation permettant un positionnement précis par rapport au cornet ; elle est placée de façon à détecter le maximum de signal. Cette diode construite au MIT nous a aimablement été prêtée par J.J. JIMENEZ, on pourra trouver une description détaillée de ses caractéristiques en [5]. Mentionnons cependant qu'elle présente l'avantage par rapport aux détecteurs à pointe, de permettre la comparaison de signaux obtenus à des moments différents car ses caractéristiques sont constantes dans le temps.

Le signal détecté en provenance de la diode est appliqué à l'entrée d'un amplificateur de bande passante à 3dB 0,03 Hz - 30 kHz ; celle-ci fixe la bande passante de l'ensemble du système de détection.

Le signal de référence issu du hacheur déclenche un moyennneur numérique multicanaux "Schlumberger MN2V 256" sur lequel est envoyé le signal issu de la détection. Le signal traité peut être soit observé à l'oscilloscope, soit transcrit sur papier à l'aide d'une table traçante, soit encore transcrit sur bande perforée.

Le montage réalisé ne permet pas l'observation des phénomènes transitoires à l'établissement et à l'arrêt de l'oscillation. En effet, ces phénomènes sont masqués par le temps de commutation du faisceau de pompe ($\sim 150 \mu\text{s}$) ainsi que par une fluctuation du déclenchement induite par l'inégalité des pales du hacheur. Ces fluctuations sont à l'origine d'un allongement apparent des temps de montée et de descente après moyennage (le temps de descente est le temps que met l'émission à revenir à zéro à l'arrêt du pompage). Nous pouvons alors seulement déduire que ces temps sont certainement inférieurs à $150 \mu\text{s}$.

I.3.1.B - TRAITEMENT DES DONNEES EXPERIMENTALES

La forme du signal SMM (fig.I.1) suggérant une décroissance exponentielle, nous avons comparé la partie décroissante de l'émission à une fonction d'essai du type :

$$f(t) = A + B \exp -\Gamma t$$

avec A amplitude du signal en régime stationnaire

A + B amplitude maximum du signal

Γ taux de décroissance du signal

Cette fonction d'essai, s'est révélée bien adaptée à la description du signal SMM. Néanmoins, en raison des fluctuations dues au hacheur,

la portion de courbe au voisinage du maximum n'est pas prise en compte. On peut cependant montrer facilement que si hors de cette zone, le signal réel est de la forme de $f(t)$, alors les fluctuations n'ont aucune influence sur les valeurs de A et Γ , et n'entraînent qu'une légère surévaluation de la valeur de B. Il faut pour cela que les fluctuations restent inférieures à une milliseconde compte tenu de l'ordre de grandeur de Γ (10^3 sec^{-1}). Ceci est le cas dans les expériences rapportées ici.

Il est possible à partir des enregistrements réalisés sur table traçante, de trouver graphiquement une valeur de Γ . Toutefois cette méthode conduit à une imprécision importante, voire de l'ordre de la valeur trouvée pour Γ . Nous avons alors utilisé une autre méthode d'exploitation des enregistrements basée sur une procédure de traitement informatique des données.

Le contenu des mémoires de chacun des canaux du moyennneur numérique est représentatif de l'amplitude du signal à un instant donné. L'état de ces mémoires est alors traduit et transcrit sur une bande perforée qui est ensuite lue par ordinateur. L'essentiel du traitement informatique est une procédure de "moindres carrés" qui adapte les paramètres de la fonction d'essai aux valeurs expérimentales.

Les valeurs de A, B, Γ obtenues par ce moyen, sont déterminées avec une précision de l'ordre de 1% tandis que l'écart-type entre courbes théorique et expérimentale est inférieur à 1% de A+B.

Notons toutefois que la procédure de moindres carrés diverge lorsque l'on essaie d'adapter les paramètres de la fonction d'essai au cas où l'émission est nulle en régime stationnaire. Dans ce cas qui est celui des pressions élevées, on ne peut obtenir de paramètres A, B ou Γ .

I.3.II RESULTATS EXPERIMENTAUX

I.3.II.A - PRESENTATION

La décroissance temporelle de l'émission SMM a été observée sur les molécules d'acide formique (HCOOH), de formaldéhyde- d_2 (D_2CO), de trioxane ($(\text{H}_2\text{CO})_3$) et de fluorure de méthyle (CH_3F). Cette liste n'est pas exhaustive, notre propos n'ayant pas été de recenser les molécules présentant ce phénomène, mais plutôt d'en préciser les caractéristiques.

Nous nous sommes principalement intéressés aux raies à $324 \mu\text{m}$ de D_2CO (10P24) et $496 \mu\text{m}$ de CH_3F (9P20) et la plupart des enregistrements réalisés concernent ces deux transitions. L'émission de D_2CO a été choisie pour son intensité et aussi parce que l'effet de décroissance observé y est important. Néanmoins nos études quantitatives sont relatives à l'émission à $496 \mu\text{m}$ de CH_3F . En effet de nombreux auteurs ont étudié cette molécule et l'on connaît bien la plupart de ses paramètres notamment les taux de relaxation qui sont ici importants [18]. C'est donc seulement sur cette transition qu'une comparaison quantitative entre résultats expérimentaux et théoriques peut être tentée.

Nous avons remarqué sur ces transitions l'influence prépondérante de la valeur de la pression sur la dépendance temporelle de l'émission. Les variations induites par un changement de pression sont plus importantes que celles provoquées par un changement de la puissance de pompe, tout au moins dans les limites de notre dispositif expérimental. Dès lors nous avons plus particulièrement étudié la décroissance en fonction de la pression du milieu amplificateur. Dans les premières expériences réalisées, la pression était mesurée par une jauge de Pirani calibrée à partir d'une jauge à capacité. Cette mesure s'est révélée par trop imprécise et par la suite nous avons utilisé directement une jauge à capacité "Datametrics".

La figure I.4 donne une vue d'ensemble de l'évolution du phénomène avec la pression. Cette figure est composée d'enregistrements effectués sur l'émission à $324 \mu\text{m}$ de D_2CO (10P24). La première courbe met en évidence le caractère impulsionnel de l'émission à haute pression (50 mTorr). A pression décroissante apparaît ensuite un fond continu : émission

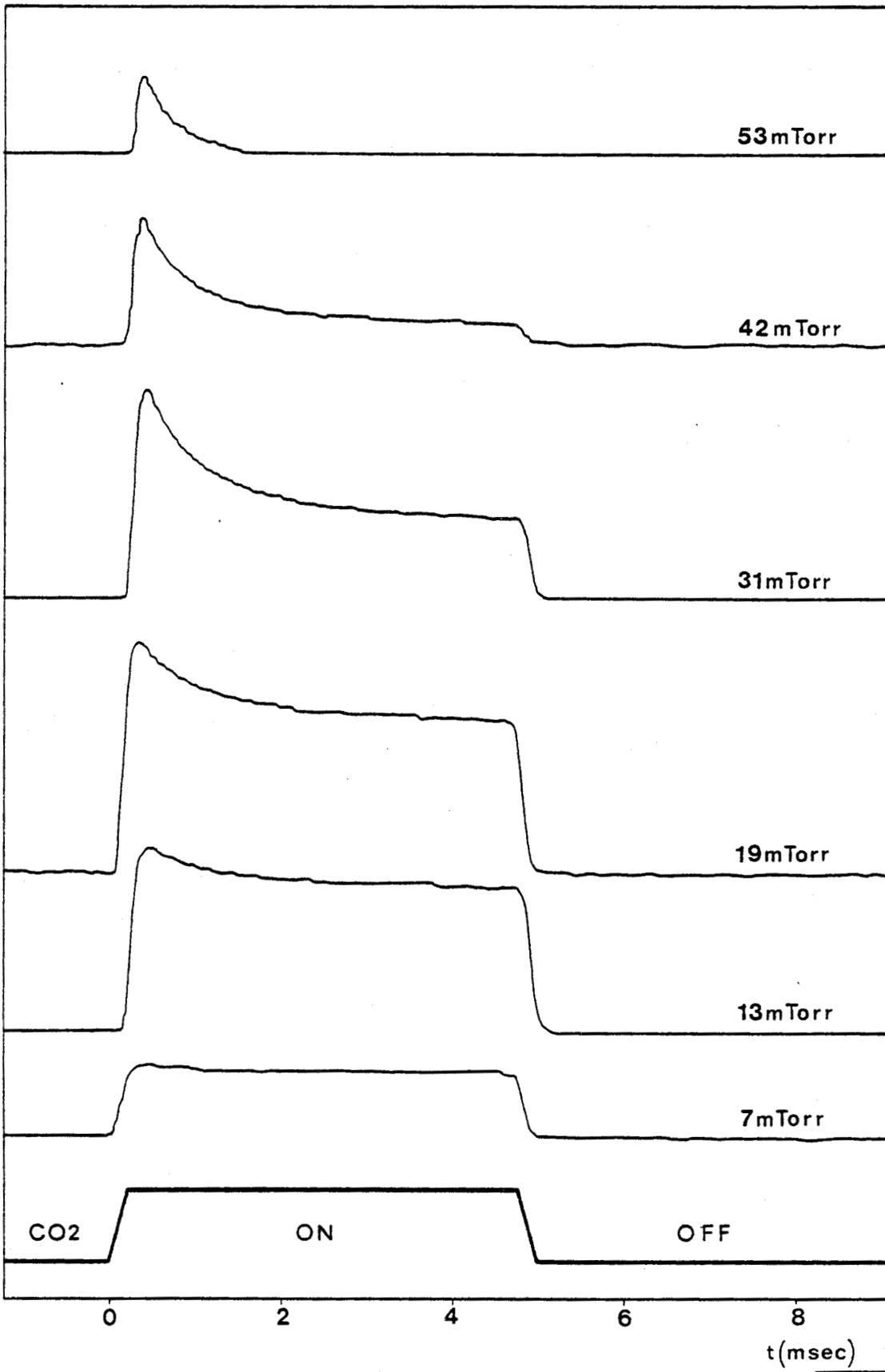


Figure I.4 : Evolution temporelle de l'émission à 324 μm de D_2CO (10P14) pour différentes valeurs de la pression du milieu amplificateur. Puissance IR de pompe 12 Watt.



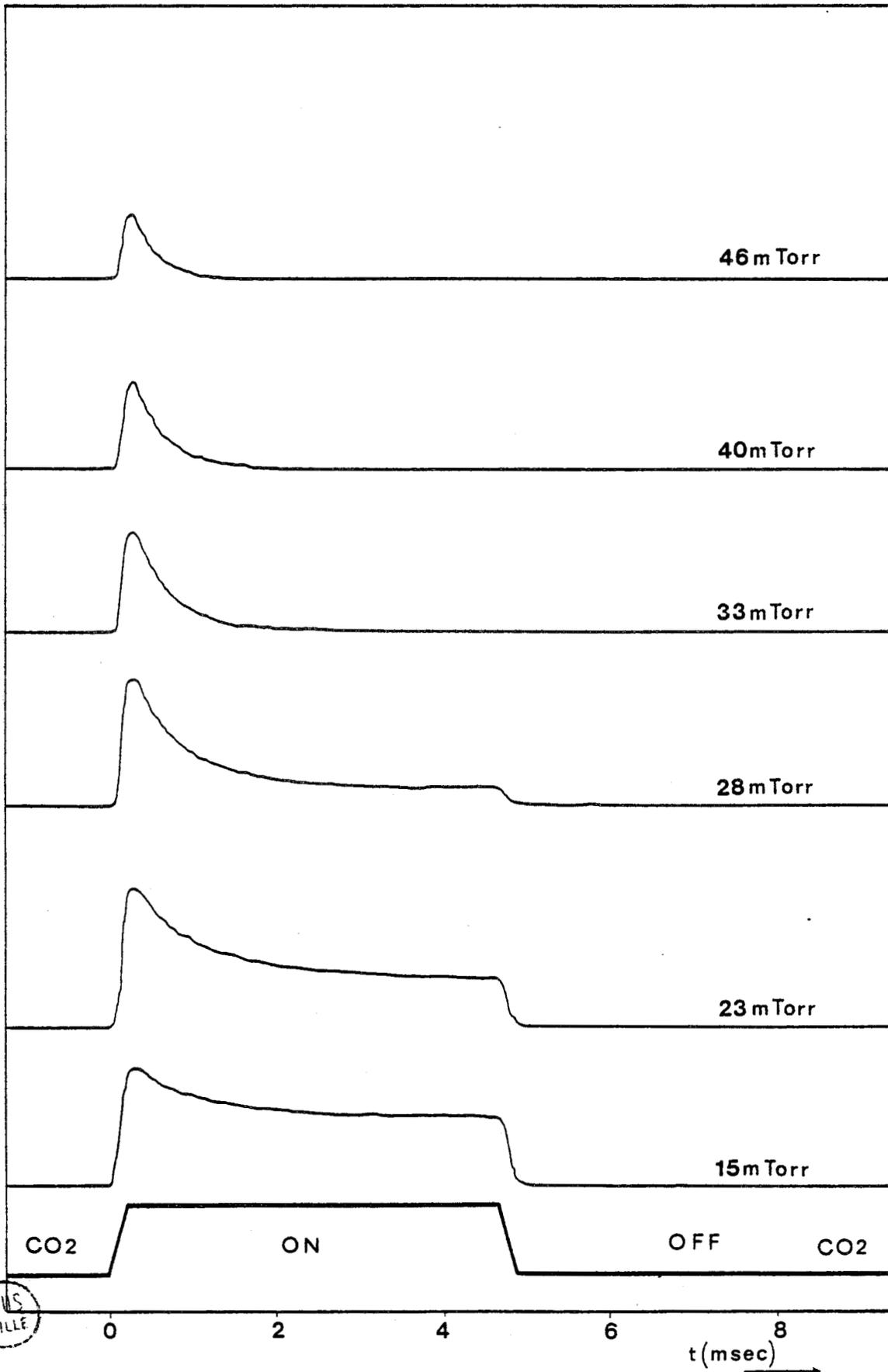


Figure I.5 : Evolution temporelle de l'émission à 496 μm de CH_3F (9P20) pour différentes valeurs de la pression du milieu amplificateur. Puissance IR de pompe 12 Watt.

stationnaire qui croît jusqu'à un optimum et redécroît ensuite continûment avec la pression. Aux basses pressions l'importance relative de la décroissance diminue, celle-ci a pratiquement disparu au-dessous de 10 mTorr.

Cette figure peut être comparée à la figure I.5 réalisée à partir d'enregistrements de l'émission à 496 μm de CH_3F (9P20). L'allure générale de ces courbes est identique pour toutes les transitions que nous avons observées, les différences résidant seulement dans l'amplitude des signaux ainsi que dans la position des maximums d'émission en fonction de la pression.

Signalons aussi que cette évolution est qualitativement la même pour des puissances de pompe différentes. Ici encore la différence réside dans les amplitudes et les pressions auxquelles sont atteints les maximums d'émission.

I.3.II.B - RESULTATS ET COMMENTAIRES

Avant de commencer cette présentation, rappelons que l'on peut relier les paramètres A, B, et Γ de la fonction d'essai $f(t)$ à ceux de l'inversion calculés précédemment (cf. I.2.II.b).

Γ doit être identique à Γ_-

l'amplitude en régime stationnaire A, doit être proportionnelle à P_0

tandis que l'amplitude maximale, A+B, doit l'être à $P_0 + P_- = P_+$

Par la suite nous appellerons A, B, Γ les paramètres expérimentaux tandis que ceux issus de la théorie seront notés P_0 , P_+ , Γ_- .

La figure I.6 présente le résultat du dépouillement informatique d'une série d'enregistrements de la dépendance temporelle de l'émission à 496 μm de CH_3F (9P20). Les différentes courbes sont relatives aux paramètres A, B et Γ de la fonction d'essai ajustée sur les enregistrements expérimentaux. Ces paramètres sont ici représentés en fonction de la pression du milieu laser, la puissance de pompe IR est fixée à 10W. Chaque symbole est relatif à un enregistrement.

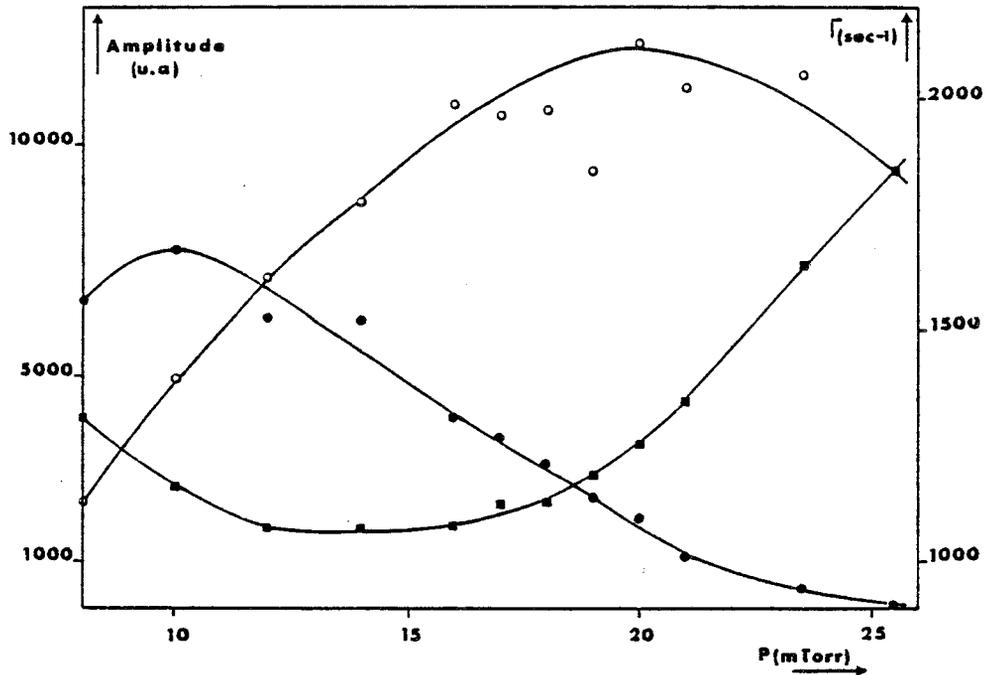


Figure I.6 : Puissance IR de pompe : 10W

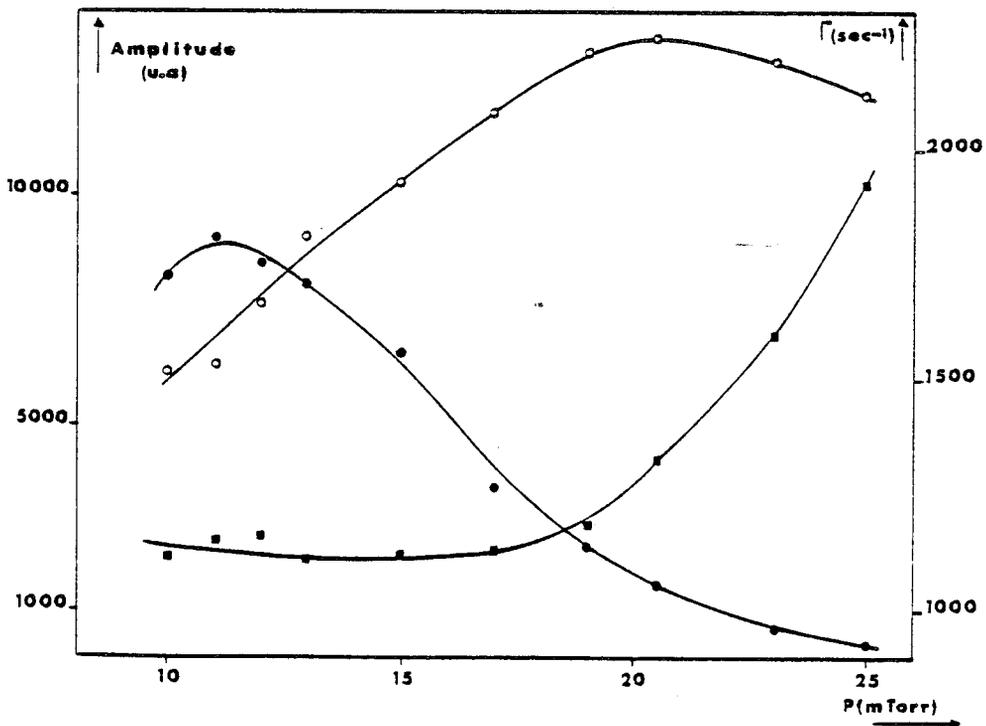


Figure I.7 : Puissance IR de pompe : 12W



Figures I.6 et I.7 : Valeurs expérimentales de l'amplitude (régime stationnaire (●), suroscillation (○)) et du taux de décroissance (■) de l'émission SMM en fonction de la pression du milieu amplificateur. Emission à $496 \mu\text{m}$ de CH_3F (9P20)

La figure I.7 présente ces mêmes paramètres pour une puissance de pompe de 12W. La comparaison de ces figures montre qu'une augmentation de la puissance de pompe induit un décalage vers les pressions croissantes de l'évolution de A et B tandis que Γ ne varie pratiquement pas. De la même façon on remarque une augmentation sensible des amplitudes A et B de l'émission pour une augmentation de la puissance de pompe de l'ordre de 20% ici. Ceci traduit le fait que l'amplitude de l'émission est plus sensible à une augmentation de la puissance de pompe que le taux de décroissance Γ .

De façon générale, à pression croissante, l'amplitude de l'émission croît, atteint un maximum et redécroît ensuite. Ceci est caractéristique de l'évolution, en fonction de la pression, de l'amplitude de l'émission du laser SMM optiquement pompé. Généralement les expérimentateurs observent l'amplitude en régime stationnaire. A (cf. fig. II.3 [5]). L'évolution comparable de la suroscillation B provient de ce que A et B sont liés, comme nous l'avons vu dans la partie précédente par la relation $P_+/P_0 = \alpha \approx (A+B)/A$ où α est une fonction croissante de la pression ; ceci explique que B ne soit pas maximal pour la même valeur de la pression que A.

D'autre part, toujours à pression croissante, on observe d'abord une diminution de Γ correspondant à un régime transitoire plus lent et ensuite un rapide accroissement de Γ dans la gamme des hautes pressions. Ce comportement est caractéristique de la superposition de deux phénomènes : le premier a une constante de temps proportionnelle à la pression et domine à basse pression (5 - 10 mTorr). Le second qui est responsable du comportement dans la gamme 18 - 25 mTorr est caractérisé par une constante de temps inversement proportionnelle à la pression. Ce résultat recoupe celui de l'analyse théorique : nous avons en effet obtenu pour le taux de décroissance $\Gamma \equiv \Gamma_-$

$$\Gamma_- = \Gamma_{diff} + \Gamma_V + \frac{(f_2 + f_3)\gamma W}{2W + \gamma}$$

que l'on peut séparer en deux termes : l'un proportionnel à la pression

$$\Gamma_V + \frac{(f_2 + f_3)\gamma W}{2W + \gamma}$$

et l'autre inversement proportionnel à la pression Γ_{diff} . Dès lors l'influence de la diffusion prédomine à basse pression, tandis que la relaxation vibrationnelle par collision et la redistribution des populations dominant à haute pression.

Nous avons calculé la valeur théorique de $\Gamma(\Gamma_-)$ en utilisant les constantes moléculaires reproduites dans le tableau I. Le taux de relaxation vibrationnelle par collision Γ_V pour CH_3F dépend beaucoup de l'état excité considéré. Pour la désexcitation de l'état ν_3 , ce taux peut être assimilé au taux de transfert $\nu_3 - \nu_6$; i.e. $1.2 \times 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$ [18]. Nous avons pris pour le taux de pompage W une valeur de $1.2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ cohérente avec les paramètres du tableau I. Les valeurs calculées de Γ sont reproduites sur la figure I.8

Tableau I : Paramètres utilisés pour le calcul de Γ et α

Moment Dipolaire Infrarouge		$1.6 \times 10^{-31} \text{ Cb.m}$
Puissance IR		10 Watts
Diamètre de la cavité SMM		. 14 m
Taux de Relaxation Rotationnelle	γ	$1.2 \times 10^8 \text{ sec}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$
Constante de diffusion [19]	D_0	$85 \text{ cm}^2 \text{ Torr sec}^{-1}$
Fonction de Partition	Z	1500
Taux de Relaxation Vibrationnelle	Γ_V	$1.2 \times 10^5 \text{ sec}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$

Le rayon de diffusion "a" a été choisi égal au rayon de l'enceinte de la cavité SMM. Une valeur plus petite de a, voisine de la taille moyenne du faisceau dans le laser, donne de meilleurs résultats en ce qui concerne la gamme de pression d'oscillation de notre laser. Toutefois dans ce cas la valeur absolue de Γ_- ainsi que la position de son

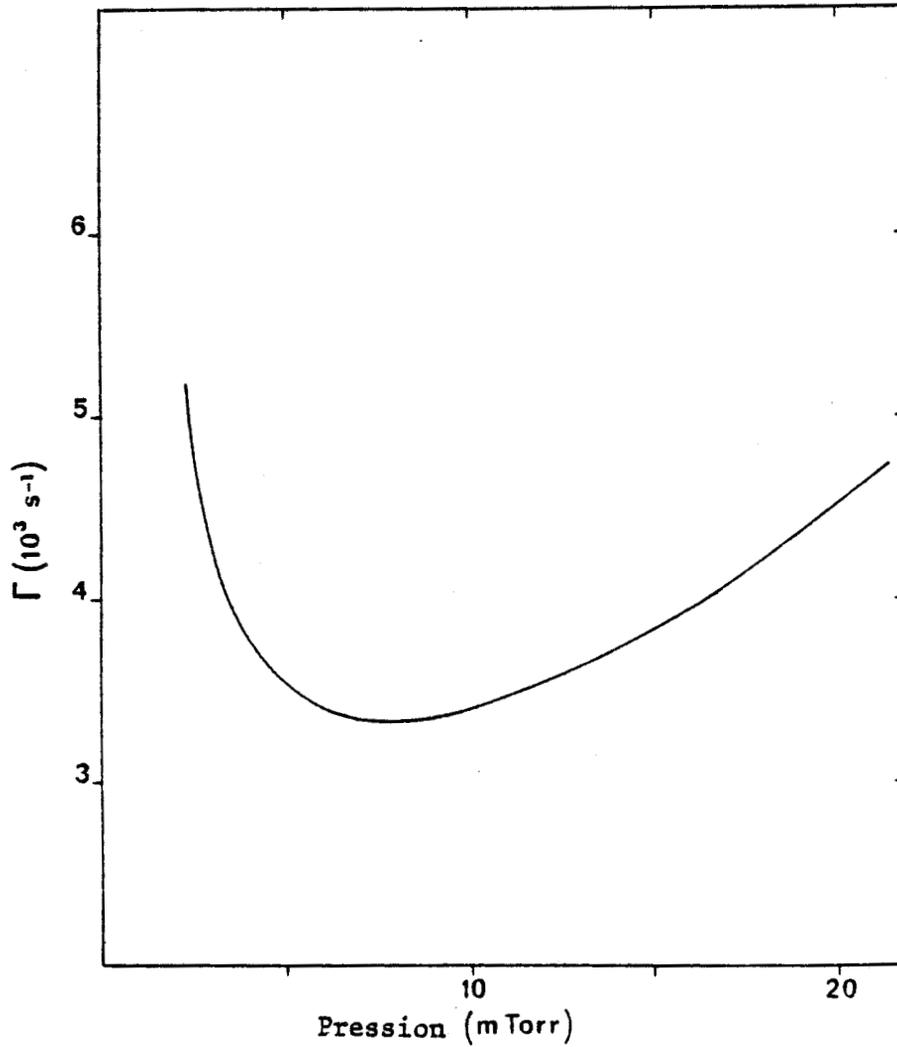


Figure I.8 : Courbe théorique de la dépendance du taux de décroissance Γ avec la pression, calculée pour les paramètres de l'émission à 496 μm de CH_3F (9P20).

minimum (en fonction de la pression) s'écarteraient davantage des valeurs expérimentales obtenues. La concordance entre les valeurs calculées et expérimentales de Γ_- n'est que semi-quantitative ainsi que l'on peut s'en rendre compte en comparant les figures I.6 et I.8. L'allure de la dépendance avec la pression est bien décrite, en particulier la position du minimum, mais les amplitudes de cette variation diffèrent d'un facteur valant environ 2.

La figure I.9 représente les paramètres A , $A+B$ et $C = (A+B)/A$ en fonction de la pression pour une même puissance de pompe de 10W. Le paramètre C est identique au paramètre α que nous avons défini dans la partie précédente. Il représente le rapport entre l'amplitude maximale de l'émission et l'amplitude en régime stationnaire. Voisin de 1 lorsque le laser SMM est au seuil d'oscillation en basse pression, celui-ci croît ensuite très rapidement lorsque l'on atteint le seuil d'oscillation en haute pression (~ 25 mTorr). Cependant la concordance quantitative entre théorie et expérience est moins bonne pour les amplitudes que pour Γ_- , même si ce dernier paramètre est remplacé par ses valeurs expérimentales.

En fait, on peut constater en comparant les figures I.6 et I.9 que près du seuil d'oscillation Γ_- varie relativement peu tandis que le changement de α est important. Ceci montre que α est plus sensible aux pertes (de la cavité, etc ...) que Γ_- . On peut donc s'attendre à ce que la concordance expérience-théorie ne soit pas bonne si les pertes du laser SMM ne sont pas introduites dans le modèle. Cette mauvaise concordance peut aussi provenir du fait que les constantes du tableau I ne donnent pas une description précise de la gamme de pression dans laquelle notre laser oscille sur la raie étudiée.

En dépit de la mauvaise concordance entre théorie et expérience pour la quantité α , nous pouvons cependant faire une remarque qualitative. La valeur de $\alpha(C)$ est représentative de la perte de rendement du laser SMM en régime d'émission stationnaire par rapport au régime pulsé.

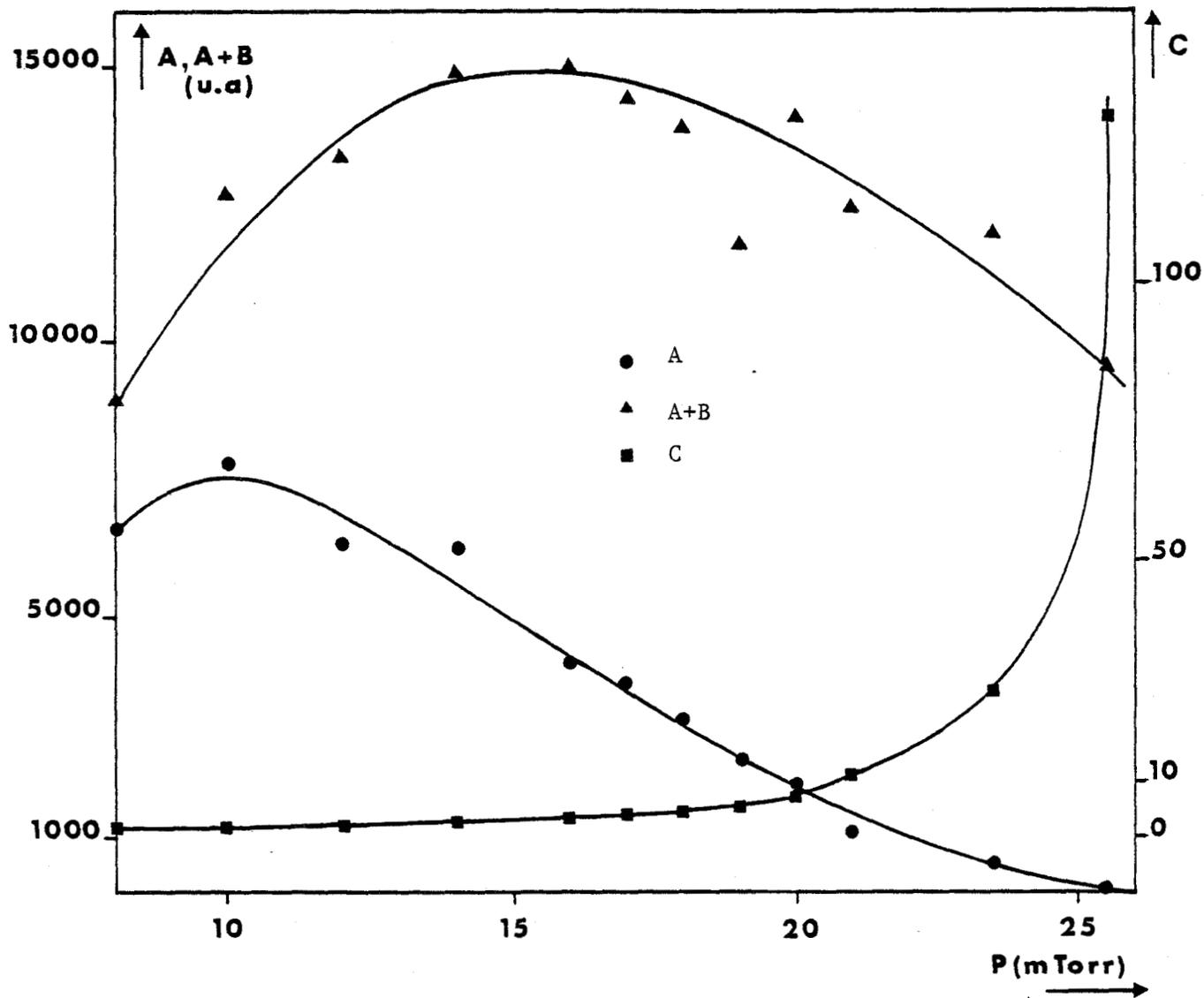
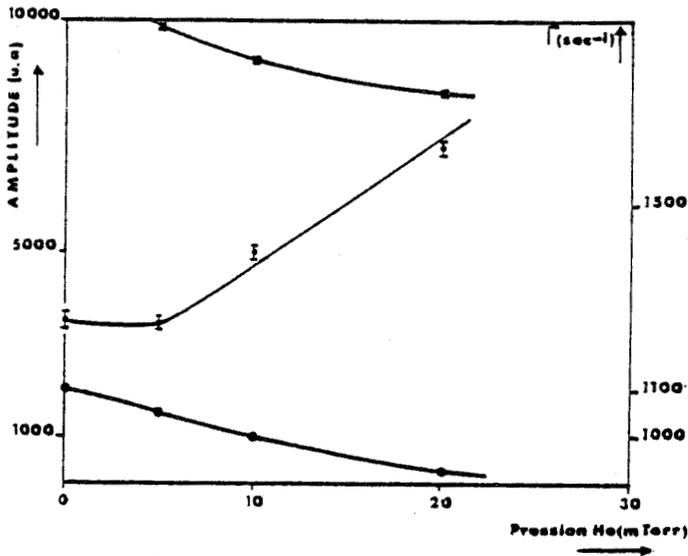


Figure I.9 : Emission à 496 μm de CH_3F , puissance de pompe 10 Watt (9P20). Evolution avec la pression des valeurs expérimentales de l'amplitude maximum de l'émission (A+B), de l'amplitude en régime stationnaire (A) et du rapport (C) de ces deux quantités. La valeur du rapport C est représentative de la perte de rendement en régime stationnaire.

Cette perte est d'autant plus grande que la pression croît, α étant voisine de 1 à basse pression et croissant ensuite très rapidement, on peut en déduire que le rendement du laser SMM est fortement dépendant de la relaxation vibrationnelle : en effet, à basse pression celle-ci s'effectue relativement bien grâce à la diffusion mais lorsque la pression augmente, l'efficacité de la diffusion diminue et la relaxation collisionnelle n'est pas suffisante pour compenser l'apport de molécules dû au pompage. On peut donc parler d'engorgement vibrationnel de l'état excité.

Si l'on compare maintenant le laser SMM au laser à gaz carbonique, on peut remarquer que pour ce dernier aussi le rendement est fortement dépendant de la relaxation vibrationnelle. Pour ce laser le problème a été partiellement résolu par l'adjonction de gaz tampon (de l'hélium) dans le but de favoriser cette désexcitation. Nous avons donc procédé de même et ajouté de l'hélium dans le milieu amplificateur du laser SMM.

Qualitativement l'effet de ce gaz tampon est identique à une augmentation de pression du gaz actif. Les figures I.10, I.11 et I.12 présentent l'évolution des quantités A, B et Γ en fonction de la pression d'hélium pour des pressions respectives de CH_3F de 10, 15 et 20 mTorr. Si pour la gamme des basses pressions de gaz actif l'adjonction d'hélium fait décroître Γ , cette adjonction a l'effet inverse à haute pression. Ceci montre qu'une addition d'hélium privilégie la relaxation vibrationnelle par collision au détriment de la diffusion ce qui est un résultat auquel on pouvait s'attendre. Concernant maintenant l'effet sur les amplitudes (A et B) celui-ci est similaire à ce que l'on obtient en augmentant la pression de gaz actif. Toutefois l'efficacité est moindre ; ainsi que l'on peut s'en rendre compte en comparant les figures précitées à la figure I.6. En effet pour obtenir la même variation, il faut ajouter plus d'hélium que de gaz actif. Ceci peut s'interpréter soit en remarquant que la relaxation vibrationnelle par collision n'est pas indépendante des états rotationnels, soit en considérant que la relaxation vibrationnelle au cours



Figures I.10, I.11 et I.12 : Valeurs expérimentales de l'amplitude (régime stationnaire (●), suroscillation (■)) et du taux de décroissance (⊙) de l'émission à $496 \mu\text{m}$ d'un mélange $\text{CH}_3\text{F}+\text{He}$ en fonction de la pression d'He. Puissance IR de pompe 10W (9P20).

Figure I.10 : Pression initiale de CH_3F : 10 mTorr

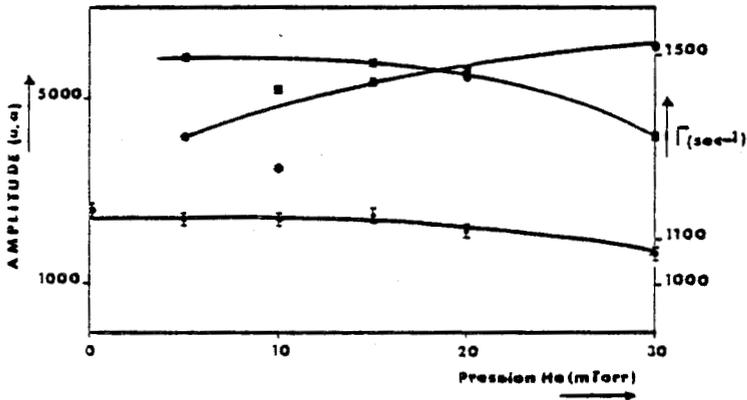


Figure I.12 : Pression initiale de CH_3F : 20 mTorr

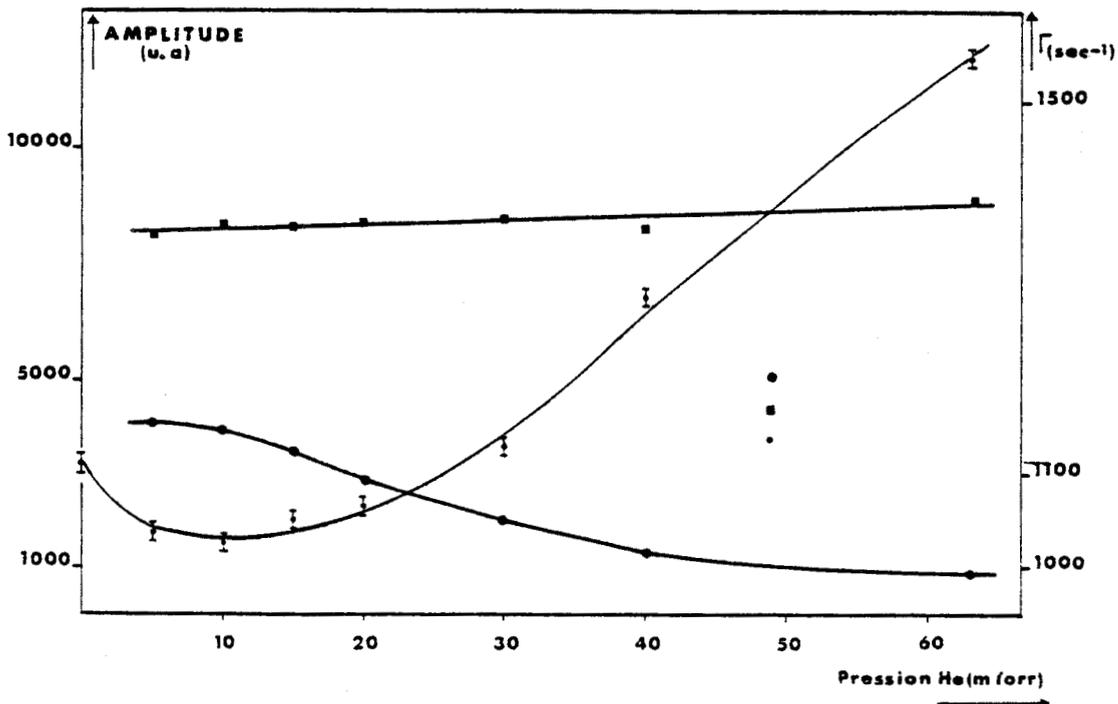


Figure I.11 : Pression initiale de CH_3F : 15 mTorr



des collisions avec l'hélium est moins efficace lors des collisions entre molécules polaires.

On peut aussi constater sur les figures mentionnées ci-avant que l'adjonction d'hélium n'augmente pas le rendement en régime stationnaire lequel rappelons le est fortement dépendant de la relaxation vibrationnelle ainsi que nous l'avons montré. CHANG [20] a étudié expérimentalement sur la raie à 496 μm de CH_3F l'effet de l'adjonction de divers gaz tampons. Il n'a observé aucune augmentation notable de la puissance émise lors de l'adjonction d'hélium, ce que nous venons de voir. D'autres molécules ont cependant permis une augmentation de cette puissance. Ce qui confirme la sélectivité de la relaxation vibrationnelle par collision. Dès lors pour obtenir une description plus précise des mécanismes de l'émission du laser SMM optiquement pompé, il faudrait pouvoir introduire cette sélectivité de la relaxation vibrationnelle. Ceci nécessite cependant une connaissance plus approfondie des mécanismes d'échange d'énergie par collision afin de définir cette sélectivité. G.W. FLYNN [18] ayant établi une carte assez complète des transferts d'énergie vibrationnelle dans CH_3F , une telle étude serait théoriquement possible. Toutefois, la multiplicité des paramètres introduits ne rendrait plus significatif l'accord éventuel entre théorie et expérience.

CONCLUSION

L'accord semi-quantitatif entre les valeurs calculées et expérimentales du taux de décroissance $\Gamma_-(\Gamma)$ est suffisamment bon pour affirmer que la décroissance observée de l'émission SMM est due à un engorgement vibrationnel. Dans la gamme des basses pressions, celui-ci est limité par les processus de diffusion spatiale. A pression croissante, bien que les molécules subissent un grand nombre de collisions, ceci n'est pas suffisant pour qu'elles soient désexcitées vibrationnellement, désexcitation qui est atteinte à coup sûr lors d'une collision sur les parois du laser. Par exemple pour CH_3F : à une pression de 5 mTorr, le libre parcours moyen

est de l'ordre de .45 mm et les molécules subissent alors environ 200 collisions rotationnelles avant d'atteindre les parois. Comme la relaxation vibrationnelle à partir de ν_3 est environ 1 000 fois moins efficace que la relaxation rotationnelle, les molécules sont alors relativement peu désexcitées par collision. Si la pression croît, la diffusion vers les parois devient plus difficile, les collisions sont plus fréquentes et ainsi la relaxation collisionnelle l'emporte sur la diffusion.

En ce qui concerne le rapport α entre l'amplitude maximale et l'amplitude en régime stationnaire de l'émission SMM, la théorie ne prédit correctement que l'accroissement de cette quantité au voisinage du seuil d'oscillation en haute pression. Ceci peut cependant être considéré comme relativement satisfaisant compte tenu du fait que le modèle a été simplifié en vue d'obtenir une solution analytique simple. Il n'est donc pas en mesure de donner une description précise des phénomènes en cause.

Les difficultés inhérentes à un traitement théorique plus complet ne sont cependant pas seulement d'ordre mathématique. Cet obstacle pouvant être surmonté par un calcul sur ordinateur. Les difficultés proviennent plutôt de la complexité de la situation physique : par exemple, la carte des transferts d'énergie vibrationnelle est compliquée et rend difficile une bonne description de la relaxation vibrationnelle qui est sélective. D'autre part, les corrélations entre la diffusion et les propriétés géométriques des modes SMM et IR dans la cavité rendent pratiquement impossibles une description correcte de la diffusion.

Néanmoins notre modèle simplifié permet d'attribuer de façon certaine la décroissance temporelle de l'émission à l'engorgement vibrationnel. Notre étude fournit la première mise en évidence expérimentale directe de cet effet dont l'influence n'avait jusqu'ici été discutée qu'à travers son influence sur la puissance émise en régime stationnaire.

CHAPITRE II

ETABLISSEMENT DU REGIME D'EMISSION

A L'ECHELLE DE LA MICROSECONDE

Les résultats présentés dans le chapitre précédent étaient relatifs à l'évolution de l'émission SMM dans un intervalle de temps débutant environ 0.5 milliseconde après l'application du pompage. Nous n'avons pu étudier l'émission entre le début du pompage et le début de cet intervalle de temps, car le temps de montée important ($\sim 150 \mu\text{s}$) de la puissance de pompe dû au hacheur mécanique masque et déforme le signal réel dans cette gamme de temps.

Dès lors l'obtention du signal réel requiert l'utilisation d'un dispositif de commutation rapide du pompage, tel le modulateur acousto-optique. Son emploi nous a permis l'observation et l'étude de l'émission SMM après application du pompage avec une résolution meilleure que 100 ns.

Dans ce chapitre qui prolonge alors le précédent, nous nous attachons à l'étude du début proprement dit de l'émission du laser SMM optiquement pompé.

La première partie de ce chapitre est consacrée à l'expérimentation. Dans un premier temps, nous décrivons brièvement le fonctionnement d'un modulateur acousto-optique. Puis dans un second temps nous présentons le montage expérimental réalisé ainsi que ses performances. Enfin, un

troisième temps est consacré aux résultats expérimentaux. Au cours de l'exposé de ces résultats, nous nous attachons à déterminer le paramètre effectif régissant l'évolution temporelle de l'émission SMM. Ce paramètre apparaît être le gain global du laser, i.e. : le gain du milieu amplificateur moins les pertes.

La seconde partie de ce chapitre est alors consacrée à une analyse théorique du comportement de l'émission. Nous sommes dans les conditions de validité de la théorie semi-classique du laser de Lamb [21] et l'allure de certaines courbes expérimentales est formellement identique aux prévisions de cette théorie que nous exposons dans une première section. Nous effectuons ensuite une comparaison entre les résultats expérimentaux et les prévisions théoriques. La théorie se révèle alors bien adaptée à la description de l'émission SMM lorsque la pression du milieu amplificateur est supérieure à 10 mTorr et la puissance de pompe inférieure à 1 Watt.

Enfin, pour conclure ce chapitre, nous résumons les points acquis et présentons les développements possibles de ce travail ; en particulier nous apportons quelques résultats expérimentaux que la théorie développée ne permet pas de décrire et qui demanderaient une étude complémentaire, à la fois expérimentale et théorique.

II.1 EXPERIMENTATION

II.1.1 MODULATION ACOUSTO-OPTIQUE [22]

Une onde ultrasonore se propageant dans un milieu solide, crée des variations périodiques spatiales de l'indice de réfraction du matériau. Ce milieu se comporte alors comme un réseau de diffraction dont le pas est égal à la demi-longueur d'onde acoustique dans le matériau. L'interaction de l'onde ultrasonore et d'une onde électromagnétique dans le milieu considéré porte le nom d'effet acousto-optique.

L'efficacité à la fréquence ν du réseau d'indice créé dans le milieu, dépend principalement du paramètre Q défini par :

$$Q = \frac{2 \pi \omega^2 L}{n_0 \nu}$$

avec ω fréquence de l'onde ultrasonore

ν fréquence de l'onde électromagnétique

n_0 indice de réfraction du matériau

L largeur du faisceau d'onde ultrasonore

Une partie importante de l'énergie électromagnétique incidente peut être transférée aux différents ordres de diffraction dans deux cas différents suivant la valeur du paramètre Q .

. Q petit ($\ll 1$) et les deux ondes en incidence normale : régime Raman, dans ce cas l'énergie est transférée à tous les ordres, positifs et négatifs, et l'intensité émergente à l'ordre n est proportionnelle à $J_n^2(\nu)$ où ν est relié à la pression acoustique, et J_n est la fonction de Bessel d'ordre n .

. Q grand (> 1) et les deux ondes sous une incidence $\alpha = \frac{\pi}{2} \pm \frac{\theta}{2}$:

Régime Bragg. θ est défini par

$\sin \theta = \frac{v_1}{v_2} \times \frac{\omega}{\nu}$ avec v_1 et v_2 vitesses de propagation dans le milieu des ondes électromagnétique et ultrasonore.

Le cas est analogue à la diffraction de Bragg des rayons X et l'énergie ne peut être transférée qu'au premier ordre. Si on désigne par I l'intensité de l'onde électromagnétique, dans ce cas, les intensités des faisceaux non dévié I_0 et dévié I_1 sont donnés à l'incidence de Bragg ($\theta/2$) par

$$I_0 = I \cos^2(\nu/2)$$

$$I_1 = I \sin^2(\nu/2)$$

Dans le cas où l'onde ultrasonore est sinusoïdale et progressive, on montre que, tant en régime Raman que Bragg, la fréquence du faisceau émergent au $n^{\text{ième}}$ ordre est :

$$\nu_n = \nu + n \omega$$

Pratiquement dans un modulateur acousto-optique, l'onde ultrasonore est produite dans le matériau par un transducteur piézo-électrique accolé au milieu et la pression acoustique est à peu près proportionnelle à la puissance du signal haute fréquence (HF) fournie au transducteur. D'autre part le matériau est taillé de telle sorte que le taux d'onde stationnaire soit minimal. On a donc créé une onde ultrasonore sinusoïdale et progressive.

La bande passante de ce type d'appareil, donc son temps de montée dépend essentiellement de la vitesse de l'onde ultrasonore dans le milieu ainsi que de l'extension de l'onde électromagnétique : la bande passante sera d'autant plus large que le faisceau électromagnétique sera plus étroit et/ou que la vitesse de l'onde ultrasonore sera plus grande.

II.1.II MONTAGE EXPERIMENTAL

II.1.II. A - MODULATION DE LA PUISSANCE DE POMPE

Nous disposons d'un modulateur acousto-optique "Isomet 1207 A0" dont le Q, voisin de 6, permet le fonctionnement en régime Bragg. En utilisant le faisceau défléchi, nous avons donc la possibilité de réaliser une commutation par tout ou rien de la puissance IR de pompe.

Le modulateur dont le domaine spectral d'utilisation est 3 - 15 μm , a un temps de montée minimal théorique de 70 ns et une bande passante maximale de 5 MHz. Son efficacité maximale, rapport de l'intensité défléchie sur l'intensité totale émergente est de 50%. Il admet une puissance totale (HF + IR) de 15W avec une limitation à 12 W de la puissance HF et un champ IR ne devant pas dépasser 50 W/cm^2 .

Le montage électronique assurant le pilotage de la modulation est représenté sur la figure II.1. Un mélangeur équilibré assure la modulation du signal haute-fréquence (40 MHz) issu du générateur HF par un

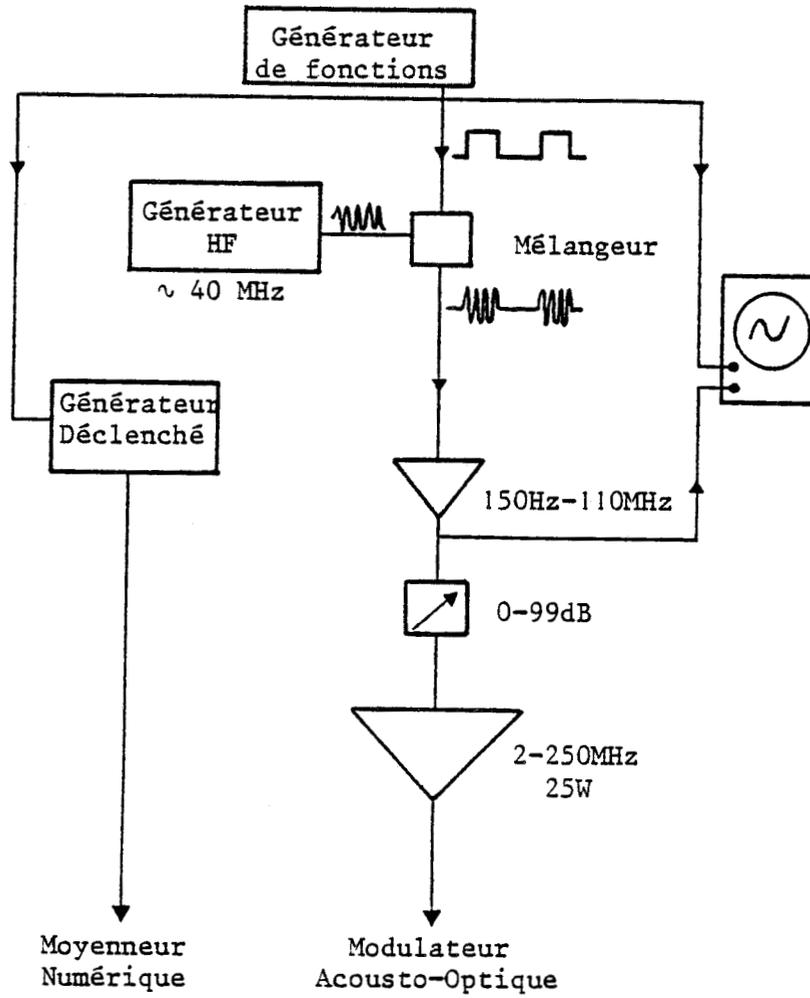


Figure II.1 : Génération du signal de commande de la modulation acousto-optique.



créneau de période et de rapport cyclique variables. Le signal est ensuite préamplifié avant d'attaquer un amplificateur haute-fréquence 2 - 250 MHz de gain fixe et pouvant délivrer une puissance de 25 W. Le modulateur acousto-optique est branché à la sortie de cet amplificateur.

La modulation appliquée au faisceau IR de pompe suit alors le signal de pilotage de HF. Ce même signal sert au déclenchement d'un moyenneur numérique utilisé en fin de chaîne de traitement du signal SMM. Le générateur déclenché délivre un créneau de durée réglable permettant ainsi de choisir l'instant de déclenchement du moyenneur numérique.

La valeur de la puissance IR de pompe envoyée dans ce modulateur résulte d'un compromis. En effet, nous désirons commuter le maximum de puissance le plus rapidement possible alors que l'efficacité de la déflexion ainsi que le temps de montée du faisceau dévié sont tous deux proportionnels à l'extension du faisceau incident.

Les essais effectués ont montré que le maximum d'efficacité pour un temps de montée minimal, est atteint lorsque la puissance HF est égale au maximum admissible, soit 12W. Dans ces conditions, la puissance IR incidente ne peut être supérieure à 3W. D'autre part, la limitation à 50 W/cm^2 de l'intensité du champ IR implique pour une puissance de 3W, un rayon de focalisation minimal du faisceau égal à 1,4 mm.

Le montage expérimental réalisé donne sur le modulateur un "waist" de 1,5 mm. Dans les conditions présentées ci-dessus, l'efficacité est de l'ordre de 30% tandis que le temps de montée de la puissance de pompage a été mesuré inférieur à 200 ns. Ce temps de montée s'est avéré négligeable devant celui de l'émission SMM elle-même.

Par la suite, la puissance de sortie du laser CO_2 étant fixée à 3W, le niveau de puissance IR injectée dans la cavité est réglé par l'ajustement de la puissance HF de commande du modulateur. Ceci présente l'avantage de ne jouer que sur l'efficacité de la déflexion et non sur

sa direction : la géométrie du faisceau introduit dans la cavité n'est donc pas modifiée. Cet ajustement de la puissance HF est réalisé grâce à un atténuateur variable placé entre préampli et ampli.

II.1.II.B - MONTAGE OPTIQUE ET ELECTRONIQUE

L'ensemble du montage réalisé est représenté sur la figure II.2. Le schéma de base est identique à celui du montage précédent hormis l'adjonction du modulateur acousto-optique et d'un miroir concave. Les deux premières lentilles servent à la focalisation du rayonnement IR sur le modulateur, tandis que le miroir sphérique assure la focalisation du faisceau défléchi sur l'entrée de la cavité SMM. Le rayon de courbure de ce miroir ($R \sim 650$ mm) ainsi que sa position ont été déterminés de façon à ce que le faisceau IR dans la cavité recouvre le mode fondamental SMM de la cavité pour les différentes émissions étudiées.

Une lame de NaCl inclinée à 45° sur l'axe du faisceau est insérée entre le miroir sphérique et le coupleur de la cavité SMM ; elle réfléchit une faible partie ($< 1\%$) de la puissance de pompe vers un détecteur HgCdTe qui est utilisé pour surveiller la commutation du rayonnement de pompe. La puissance IR injectée est mesurée à l'entrée de la cavité.

Le signal SMM est détecté par une diode à contact Tungstène-Silicium (W-Si) montée dans un support "Custom Microwave MU 135". Ce type de détection est plus délicat à mettre en oeuvre que la diode Schottky que nous utilisions précédemment, notamment à cause de la fragilité du contact. Dès lors les caractéristiques de la diode ne sont pas identiques pour tous les enregistrements effectués, et les amplitudes mesurées ne peuvent être comparées directement.

Cette détection a été utilisée car nous ne disposions plus de la diode Schottky qui avait servi pour les expériences relatées au chapitre précédent.

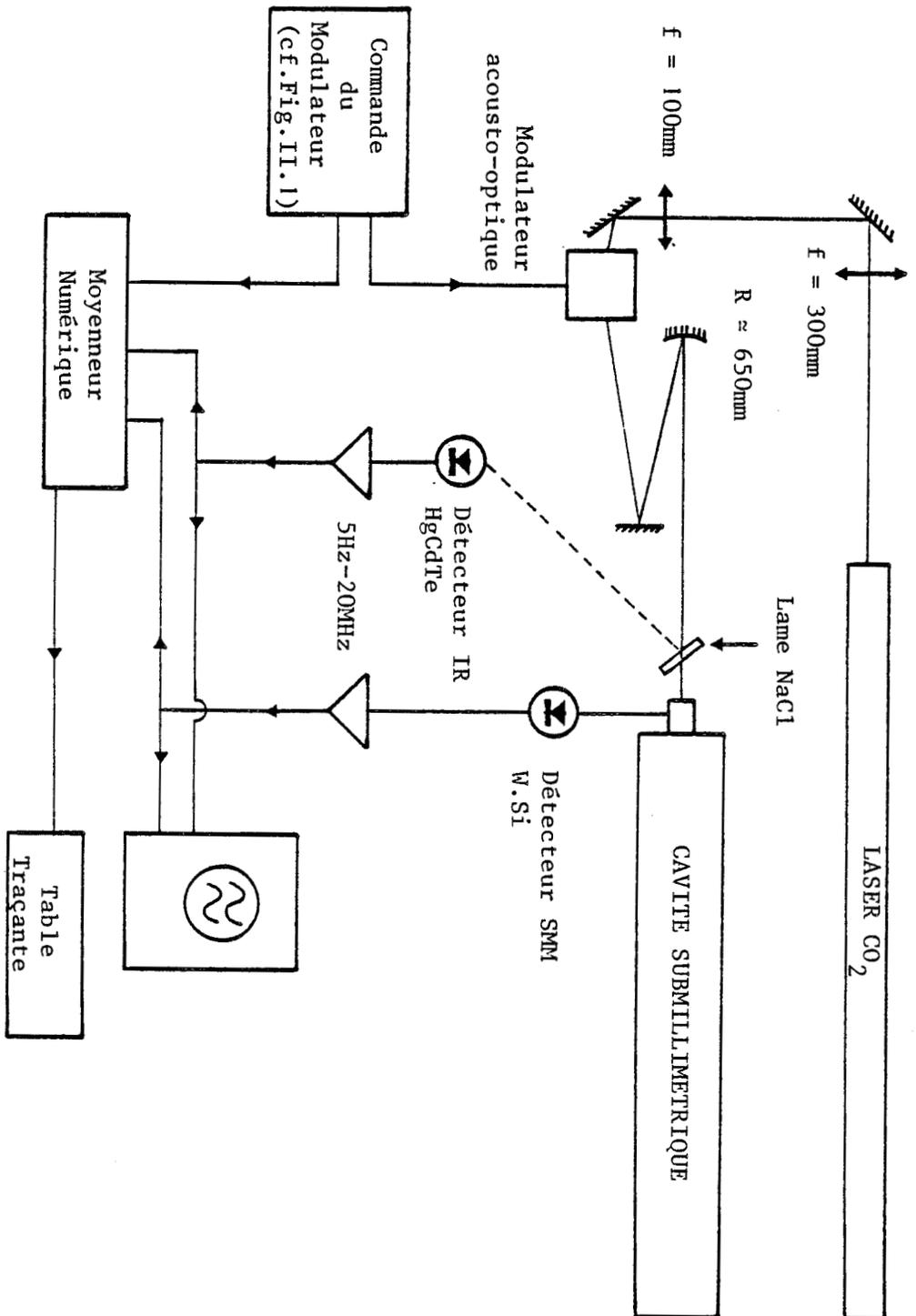


Figure II.2 : Montage expérimental. Puissance de pompe maximum 1 Watt.

La bande passante de la détection, 5 Hz - 20 MHz à 3dB, est déterminée par celle des amplificateurs utilisés. Les signaux obtenus peuvent alors être observés, soit directement à l'oscilloscope soit sur l'écran de visualisation du moyeneur numérique ATNE utilisé. Ils peuvent ensuite être transcrits sur table traçante ou encore sur bande perforée.

Le moyeneur numérique comporte 256 canaux et dispose de deux têtes d'échantillonnage : 10 ns et 100 ns. Le moyeneur est aussi muni de marqueurs permettant des mesures de temps et d'amplitude. C'est avec ces marqueurs que nous avons mesuré le temps de montée (10% - 90%) de l'émission SMM ainsi que le délai entre la commutation du pompage et la détection de l'émission SMM ; l'émission étant détectée dès que son amplitude est supérieure au bruit.

Cependant même lorsque le rapport signal sur bruit est grand, l'instant correspondant ne peut être déterminé exactement, à cause notamment de la faible pente du signal à cet instant. L'erreur de mesure est alors de l'ordre de la microseconde dans le cas le plus défavorable.

Expérimentalement nous avons procédé comme suit : le signal a toujours été moyenné pendant un temps tel que le bruit résiduel soit inférieur à 1% de l'amplitude stationnaire I_S^{\min} obtenue avec la plus petite puissance de pompe utilisée. Nous avons alors pris pour valeur du délai, l'intervalle de temps entre l'application du pompage et l'instant où l'émission a une amplitude de l'ordre du centième de I_S^{\min} . Nous verrons ultérieurement que par suite de la forme particulière du signal, ceci n'entraîne pas d'imprécision supplémentaire sur la valeur du délai.

II.1.III RESULTATS EXPERIMENTAUX

Le montage expérimental autorise une puissance de pompe maximale de 1 Watt. Celle-ci ne nous a pas permis la poursuite de l'étude de la

raie à 496 μm de CH_3F (9P20) dont la puissance de seuil est de l'ordre de 5W pour notre installation. Il a fallu alors trouver des émissions ne nécessitant qu'une faible puissance de pompe, tout en tenant compte d'autre part du décalage de la fréquence de pompe induit par le modulateur acousto-optique, plus ou moins 40 MHz suivant l'orientation de ce dernier.

Les résultats que nous présentons ici sont relatifs au formaldéhyde- d_2 (D_2CO) et à l'acide formique (HCOOH). Ils ont été obtenus sur les émissions suivantes :

Entre parenthèses sont indiqués la transition de pompe CO_2 ainsi que le décalage utilisé dépendant de l'orientation du modulateur.

H^{12}COOH	513 μm	(9R28 + 40 MHz)
	742 μm	(9R40 - 40 MHz)
H^{13}COOH	1030 μm	(9R30 - 40 MHz)
	788 μm	(9P12 + 40 MHz)
D_2CO	752 μm	(9R32 + 40 MHz)

Les résultats expérimentaux sont qualitativement identiques pour les différentes émissions précitées. Nous ne présenterons donc pas la totalité des enregistrements réalisés, mais n'en extrairons que les plus significatifs.

Dans un premier temps, nous illustrerons sur quelques exemples, l'allure générale de l'émission SMM. Puis nous étudierons de façon plus particulière, l'évolution du délai et du temps de montée en fonction des paramètres expérimentaux. Dans chaque cas nous nous attacherons à dégager des résultats, les paramètres significatifs effectifs.

II.1.III. A - ALLURE GENERALE DE L'EMISSION SMM

Les figures II.3, 4 et 5 (réalisées sur la raie à 788 μm de H^{13}COOH) montrent l'évolution de l'établissement du régime d'émission

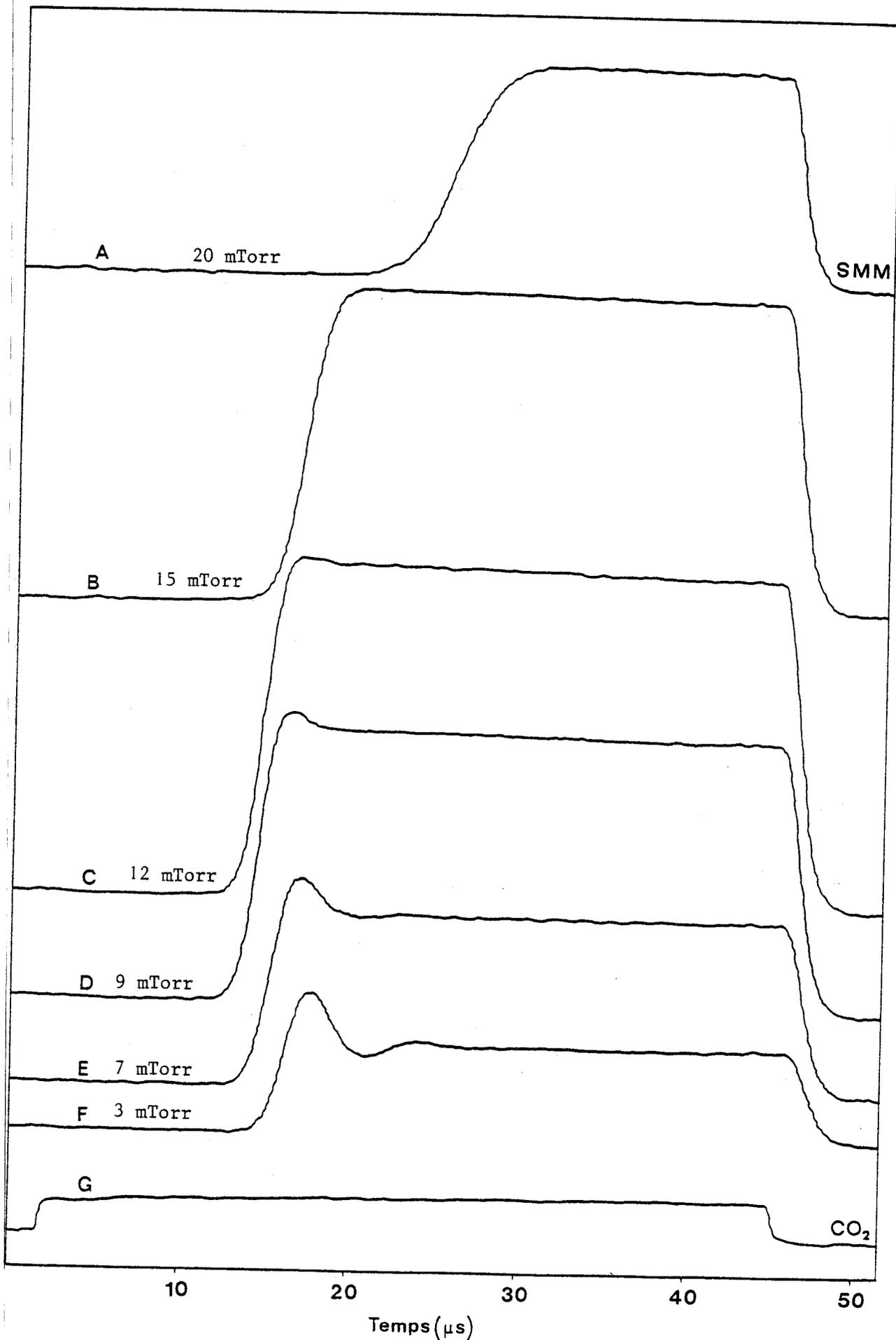
RUS
LILLE

Figure II.3 : Evolution temporelle de l'émission du laser SMM après application rapide du pompage pour différentes pressions du milieu amplificateur. Emission à 788 μm de H^{12}COOH (9P12), puissance IR de pompe 0.8 Watt.

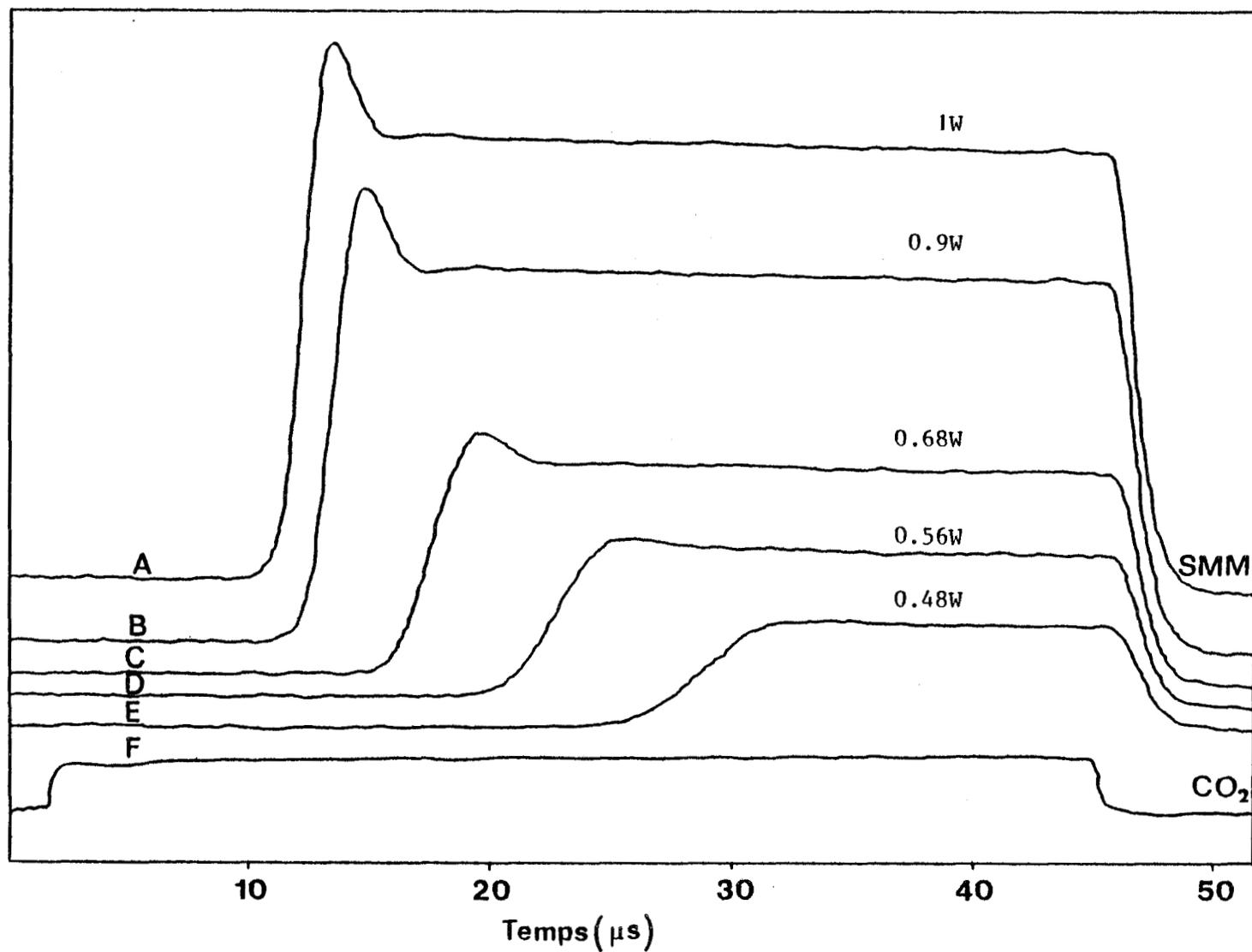


Figure II.4 : Evolution temporelle de l'émission du laser SMM après application rapide du pompage pour différentes valeurs de la puissance IR de pompe. Emission à 788 μm de H¹³COOH (9P12) pression du milieu amplificateur 7 mTorr.



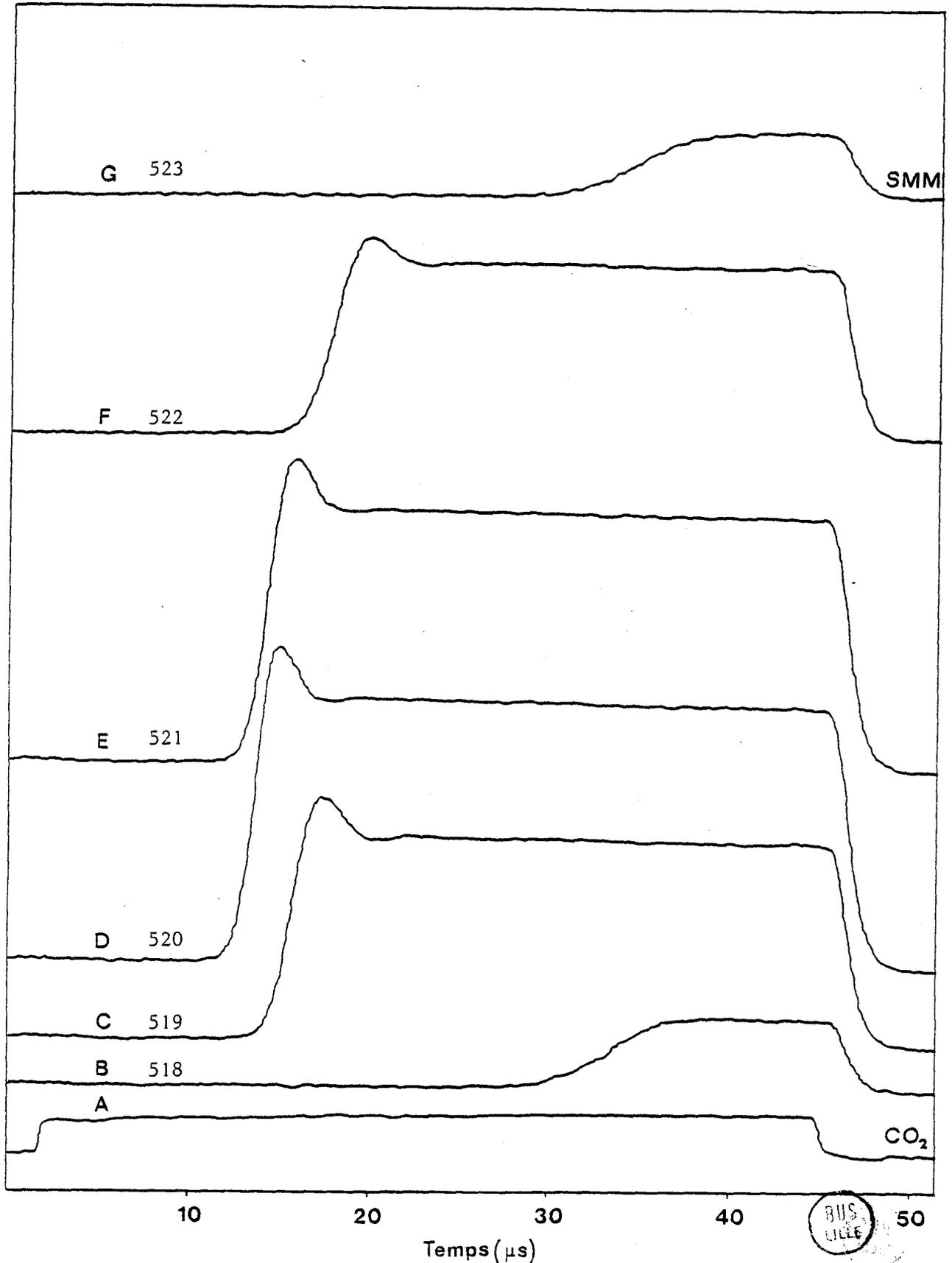


Figure II.5 : Evolution temporelle de l'émission du laser SMM après application rapide du pompage pour différentes valeurs de la fréquence d'accord de la cavité SMM. Les chiffres donnent le déplacement (en μm) du miroir plan par rapport à une origine arbitraire. Emission à $788 \mu\text{m}$ de H^{13}COOH (9P12), pression du milieu amplificateur 7 mTorr, puissance IR de pompe 0.9 Watt.

en fonction de trois paramètres : la pression du milieu amplificateur (II.3), la puissance de pompe (II.4) et l'accord de la cavité SMM (II.5).

Sur chaque figure la courbe du bas est relative à la puissance de pompe. De façon générale, on remarque un délai entre l'application du pompage et l'apparition de l'émission SMM. Celle-ci croît ensuite rapidement en un temps de l'ordre de quelques microsecondes et atteint un régime stationnaire.

Avant d'examiner séparément chacune de ces figures, précisons quelques conventions :

- Dans la suite nous appellerons temps de montée (T_m) de l'émission, l'intervalle de temps entre l'instant où l'amplitude vaut 10% de l'amplitude en régime stationnaire et celui où elle vaut 90%.

- La cavité sera dite "accordée" lorsque sa fréquence de résonance est égale à la fréquence propre de la transition d'émission. De façon générale nous parlerons de l'accord de la cavité : celui-ci est maximal à la résonance (fréquences égales) et décroît lorsque l'écart entre ces fréquences augmente.

Les enregistrements de la figure II.3 ont été obtenus avec une puissance de pompe de 800 mW, la cavité étant accordée. La pression du milieu amplificateur varie de 20 mTorr (A) à 3 mTorr (F). Observons l'évolution du délai avec la pression : lorsque celle-ci augmente, le délai commence par décroître, atteint un minimum (D) et croît ensuite. On peut remarquer que cette évolution est inverse de celle de l'amplitude qui atteint son maximum entre les courbes C et D. Ce parallèle montre la dépendance du délai avec l'inversion de population qui est responsable de l'amplitude de l'émission en régime stationnaire.

Notons aussi sur cette figure, l'existence d'une suroscillation au démarrage de l'émission lorsque la pression est inférieure à 10 mTorr.

Précisons tout de suite que cette suroscillation n'apparaît que lorsque la pression est inférieure à 10 mTorr quels que soient l'accord de la cavité et la puissance de pompe.

Pour la série d'enregistrements de la figure II.4, la pression est constante : 7 mTorr et la cavité SMM est accordée. Les courbes représentent l'évolution temporelle de l'émission avec comme paramètre la puissance de pompe qui varie ici de 1W (A) à 0.5W (E). La comparaison des figures II.3 et II.4 révèle la similitude de l'évolution de la puissance de sortie du laser SMM lorsque l'on augmente la pression ou diminue la puissance de pompe. En effet, l'évolution de la forme du signal est identique et seules les amplitudes diffèrent. Ceci confirme l'influence de l'inversion de population qui est, en première approximation, proportionnelle à la puissance de pompe.

La figure II.5 montre la variation du signal en fonction de l'accord de la cavité SMM. Les enregistrements ont été obtenus avec une puissance de pompe de 900 mW pour une pression du milieu amplificateur fixée à 7 mTorr. Les enregistrements successifs A à G ont été effectués après avoir à chaque fois augmenté la longueur de cavité de 1 μm . Notons que généralement le profil du mode d'émission de la cavité est décrit en déplaçant le miroir plan de 5 à 10 μm suivant que l'émission est plus ou moins intense.

On observe ici que la puissance SMM maximum est obtenue entre les courbes D et E ; remarquons que l'évolution du signal SMM est symétrique par rapport à ce maximum. Ceci ne fait que traduire la symétrie en fréquence du profil du gain global. En effet, d'une part le gain du milieu est symétrique par rapport à la fréquence propre (ω) de la transition, quel que soit le profil de la raie, d'autre part la variation des pertes liée aux effets de tirage de fréquence est symétrique par rapport à ω du fait de la symétrie de la courbe de réponse de la cavité.

Cette analyse montre que la grandeur intermédiaire effective régissant l'évolution de l'émission est le gain global (gain-pertes) du laser.

La comparaison des trois figures précitées montre une corrélation entre l'amplitude du régime stationnaire, le délai et le temps de montée de l'émission SMM. De façon générale, délai et temps de montée varient en sens inverse de l'amplitude en régime stationnaire. A partir de notre analyse précédente, on peut donc dire que l'amplitude est une fonction croissante du gain global ce qui est conforme à l'intuition, tandis que le délai est une fonction décroissante de ce même gain global.

La figure II.6 révèle de façon plus précise la corrélation entre amplitude et délai. Sur cette figure, nous avons reporté le délai en fonction de l'amplitude en régime stationnaire à partir des valeurs que l'on peut obtenir sur les figures II.3, 4 et 5.

Les courbes donnant le délai en fonction de l'amplitude avec comme paramètre la puissance de pompe ou l'accord de la cavité SMM sont confondues. Ceci nous permet de dire que le gain global varie de la même façon lorsque l'on diminue la puissance de pompe ou l'accord de la cavité.

Observons l'allure de la courbe obtenue avec comme paramètre la pression du milieu amplificateur. Si l'on trace cette courbe à pression croissante, le sens de variation est donné par les flèches. On remarque qu'il existe deux zones distinctes suivant la valeur de la pression. A basse pression l'amplitude augmente avec la pression tandis que dans une gamme de pressions supérieures, la variation s'inverse. Ceci suit l'évolution habituelle de la puissance émise par le laser SMM en fonction de la pression du milieu amplificateur (cf Fig. II.3 [5])

L'évolution du gain global en fonction de la pression doit être, suivant notre analyse, semblable à celle de l'amplitude. Notons cependant que la différence entre les deux premières courbes et celle obtenue avec

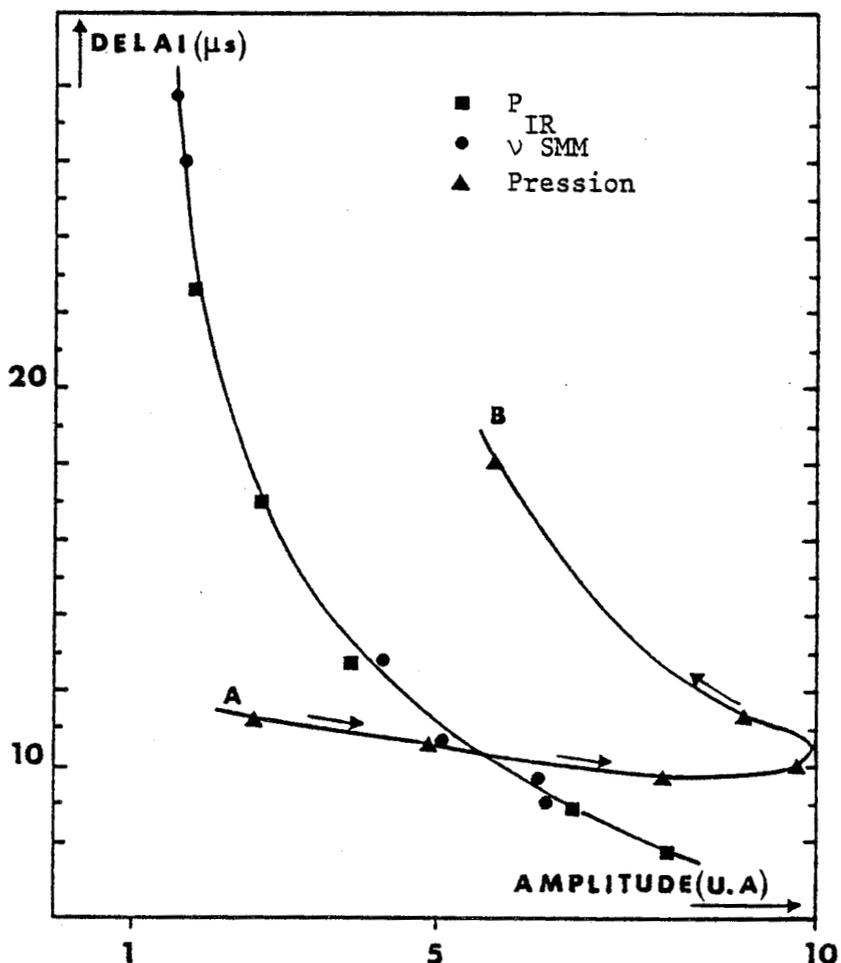


Figure II.6 : Courbes Délai-Amplitude de l'émission SMM pour trois paramètres : puissance IR de pompe - fréquence d'accord de la cavité - pression du milieu amplificateur.

la pression comme paramètre, suggère une influence particulière des paramètres de relaxation qui sont inchangés pour les deux premières courbes alors qu'ils varient dans la dernière.

Nous avons ici déduit à partir de quelques résultats expérimentaux que le paramètre régissant l'évolution de l'émission SMM est principalement le gain global. Nous allons poursuivre cette analyse d'une façon un peu plus précise en considérant l'évolution du délai et du temps de montée en fonction des divers paramètres expérimentaux.

II.1.III.B - DELAI ET TEMPS DE MONTEE

Il est intéressant de considérer délai et temps de montée pour caractériser l'évolution de l'émission SMM. En effet pour déterminer ces quantités, il suffit d'une mesure de temps qui peut être effectuée de façon relativement précise expérimentalement, et surtout cette mesure dépend très peu des caractéristiques de la pointe détectrice. Elle est donc aisément reproductible à l'inverse des mesures d'amplitude qui dépendent beaucoup de la qualité du détecteur.

Nous avons effectué une série d'expériences sur la raie à 742 μm de HCOOH (9R40) dans le but de mesurer précisément le délai. Celui-ci a chaque fois été mesuré dans des conditions telles qu'après moyennage, le bruit résiduel de la détection soit inférieur à 1 % de la valeur de l'amplitude maximale du signal.

Variation du délai avec la pression du milieu amplificateur

Sur la figure II.7, le délai est reporté en fonction de la pression du milieu amplificateur. La puissance de pompe est constante et vaut 700 mWatt, la cavité SMM est accordée. Notons que dans la zone des pressions inférieures à 10 mTorr, il existe une suroscillation au début de l'émission. Hors de cette gamme de pression, le délai croît avec la pression et au-delà d'une pression de 12 mTorr, la courbe expérimentale est correctement décrite par :

$$T_D = K(p_0 - p)^{-1}$$

où T_D désigne le délai et p la pression en millitorr. K et p_0 sont des constantes dont les valeurs sont : $K \approx 121.6$ ($\mu\text{s mTorr}^{-1}$), $p_0 \approx 32.3$ (mTorr).

Cette expression montre que lorsque la pression du milieu amplificateur tend vers 32 mTorr, le délai tend vers l'infini. Expérimentalement

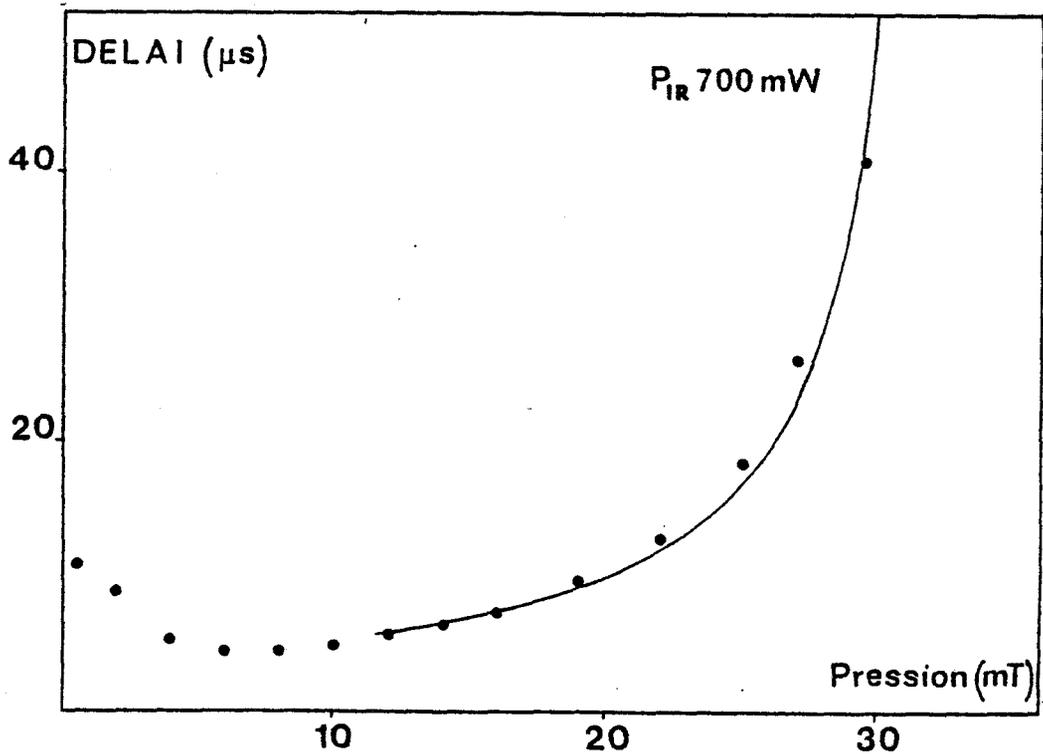


Figure II.7 : Emission à 742 μm de HCOOH (9R40). Evolution du délai avec la pression du milieu amplificateur. La ligne continue représente la fonction $T_D = K [p_0 - p]^{-1}$ pour $K = 121.6 \mu\text{s} \cdot \text{mTorr}$ et $p_0 = 32.3 \text{ mTorr}$.

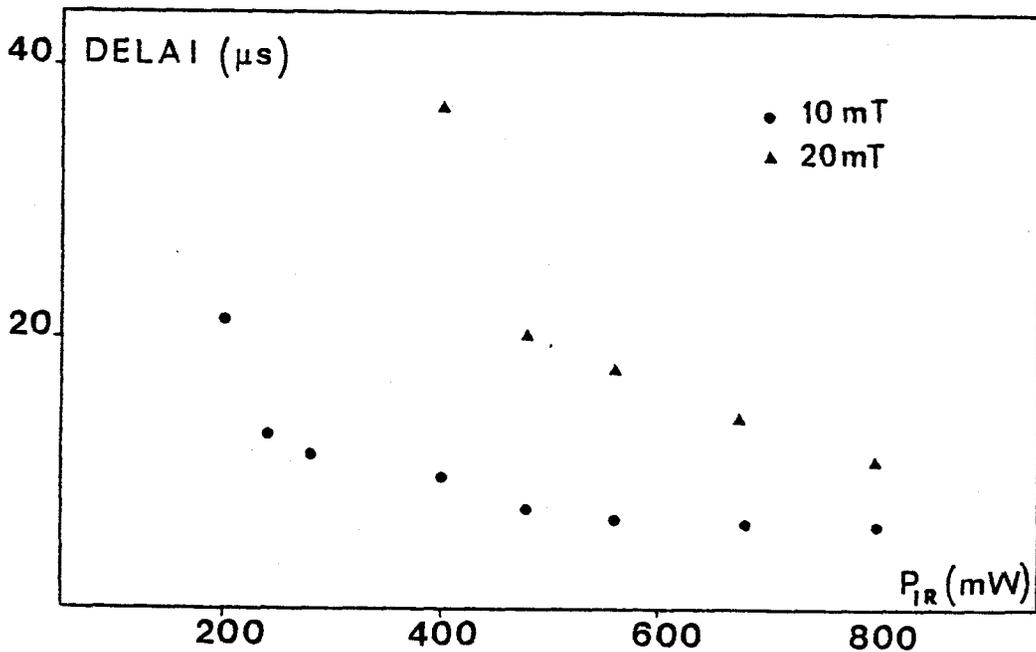


Figure II.8 : Emission à 742 μm de HCOOH (9R40). Evolution du délai avec la puissance de pompe pour deux valeurs de la pression du milieu amplificateur. A puissance de pompe croissante, le délai est limité par la saturation de la transition IR de pompe (courbe 10 mTorr).

ceci est vrai car pour cette valeur de la pression on n'observe plus d'émission, le délai est infini. Ceci nous permet de dire qu'à cette pression, le gain est inférieur aux pertes et confirme la dépendance du délai avec l'inverse de ce gain global α . Ce dernier doit donc pouvoir s'écrire à la résonance et pour une puissance de pompe donnée

$$\alpha = K'(p_0 - p) \quad \text{où } K' \text{ et } p_0 \text{ dépendent de la puissance de pompe.}$$

Variation du délai avec la puissance de pompe

La figure II.8 montre clairement l'influence de la puissance de pompe sur le délai. L'effet est qualitativement identique pour les deux valeurs de pression représentées ici, à savoir une diminution du délai lorsque la puissance de pompe augmente. On peut remarquer que la différence entre les deux courbes est compatible avec l'expression de T_D donnée ci-avant. La constante K définie ci-avant est donc une fonction décroissante de la puissance de pompe ce qui implique que le gain global est une fonction croissante de la puissance de pompe, conforme aussi à l'intuition. Toutefois une remarque s'impose : en effet on peut voir que pour une pression de 10 mTorr, le délai atteint un minimum pour une puissance de pompe de l'ordre de 600 mWatt et ne varie plus guère si l'on augmente encore le pompage.

Ce fait est comparable à l'évolution de la puissance émise qui elle aussi plafonne au-delà d'une certaine valeur du pompage, ce qui est un constat général pour le laser SMM optiquement pompé (voir par exemple fig.II.12 page 79 de la référence 5). D'autre part cette valeur "critique" du pompage est d'autant plus faible que la pression du milieu est basse. Ceci peut aussi se remarquer sur la figure II.8 ; en effet tandis que le délai est stationnaire pour une pression de 10 mTorr, il varie encore au voisinage de 20 mTorr. On peut alors penser que la saturation du milieu limite le délai.

En effet, l'amplitude de l'émission est limitée par suite de la saturation de la transition IR de pompe qui induit une saturation du gain de la transition SMM car l'inversion de population ne peut plus augmenter. Dans notre interprétation, le délai étant lié au gain subit lui aussi cet effet de saturation, car gain et inversion de population sont proportionnels.

Notons au passage que dans le chapitre précédent, nous avons montré que l'inversion de population maximale est atteinte en un temps de l'ordre de γ^{-1} où γ est la constante de relaxation rotationnelle. En définissant γ de la même façon que précédemment ($2\pi\Delta\nu$) avec $\Delta\nu$ valant 20 MHz Torr⁻¹, à 10 mTorr l'inversion est réalisée en un temps de l'ordre de la microseconde, petit devant le délai observé. Donc le régime transitoire d'établissement de l'inversion n'affecte pas le signal observé.

Evolution du délai avec l'accord de la cavité SMM

La figure II.9 a été relevée pour une puissance de pompe de 700 mWatt et une pression de 10 mTorr. Le délai est ici reporté en fonction de la longueur de la cavité, i.e. sa fréquence de résonance. L'accord est réalisé pour le point 0 qui correspond à une longueur de cavité pour laquelle l'amplitude de l'émission est maximale et le délai minimal. On observe que cette figure est symétrique par rapport au point 0. Ceci ne fait que traduire la symétrie du profil de gain et est conforme à notre interprétation selon laquelle le gain est le paramètre effectif.

On remarque que le délai est une fonction croissante du désaccord de la cavité, toutefois il est difficile de préciser plus avant cette dépendance à partir de la figure II.9.

Signalons que les segments importants à chaque extrémité de la courbe ne représentent pas des imprécisions de mesure. En effet lorsque la cavité est suffisamment désaccordée, quand le gain global est suffisamment

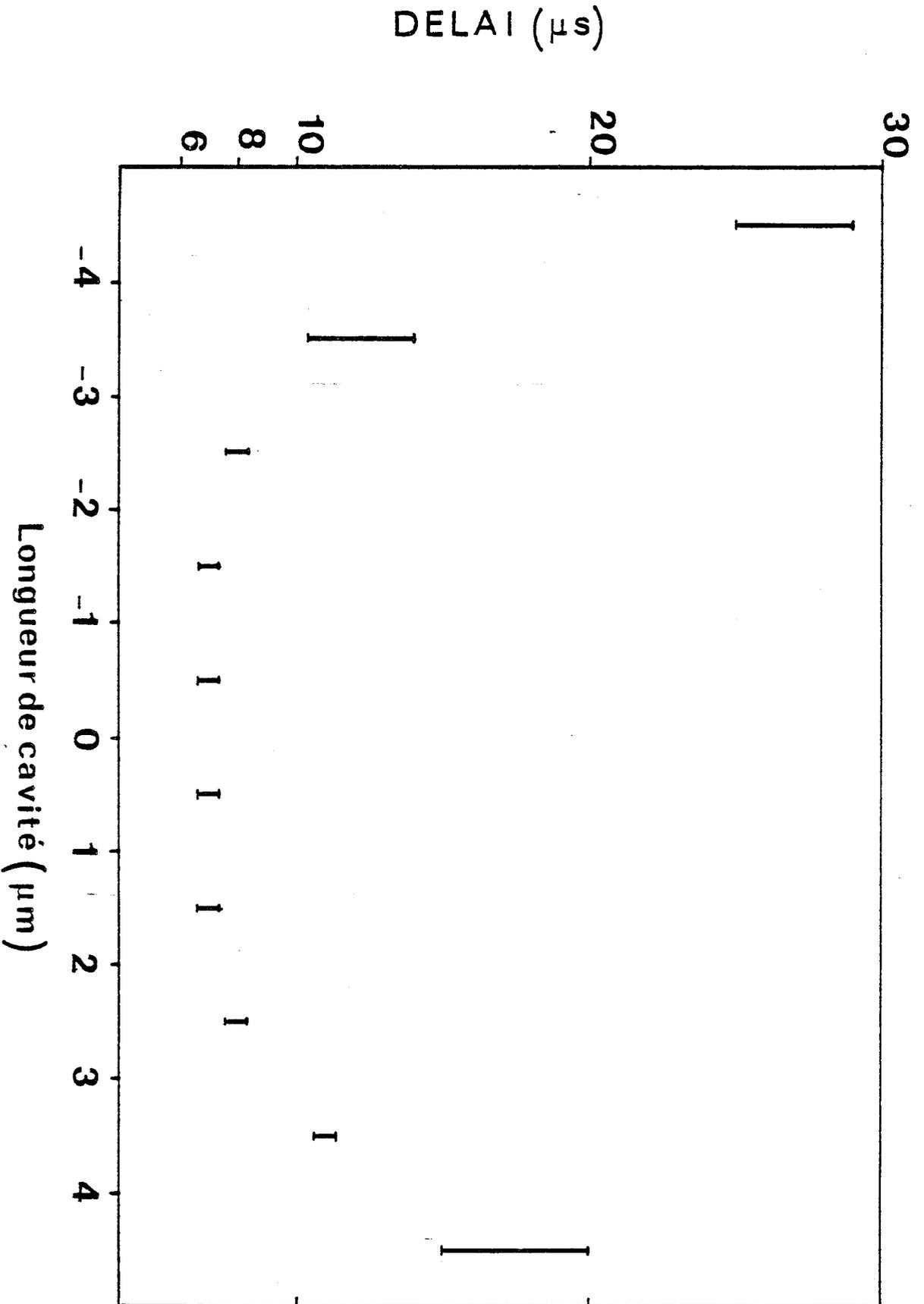


Figure II.9 : Emission à 742 μm de HCOOH (9R40), puissance de pompe 0.7 Watt. Evolution du délai avec la fréquence d'accord de la cavité SM. En 0 les fréquences propres de la cavité et de la transition moléculaire sont égales, la symétrie des valeurs du délai par rapport à ce point traduit la symétrie en fréquence du gain de la transition SM.



faible, on observe une fluctuation temporelle importante de l'émission qui conserve cependant la même forme. Ce comportement est identique pour toutes les résonances de la cavité et ne provient que du désaccord de cette dernière.

En présence de fluctuations importantes, le délai moyen ainsi que l'amplitude temporelle des fluctuations ont été mesurés à l'oscilloscope. En effet, on observe un délai différent à chaque commutation de la puissance de pompe. La fréquence de cette commutation étant de l'ordre du kHz, il est alors facile de mesurer l'amplitude des fluctuations car la rémanence de l'écran de l'oscilloscope est telle que l'on observe la superposition des différents signaux. L'origine de ces fluctuations sera explicitée ultérieurement.

Evolution du temps de montée avec la pression du milieu amplificateur

Toujours pour la raie à $742 \mu\text{m}$ de HCOOH , nous avons relevé le temps de montée de l'émission SMM en fonction de la pression du milieu amplificateur. La figure II.10 présente les résultats obtenus. Remarquons que le temps de montée n'a pas été mesuré pour les pressions inférieures à 10 mTorr ; dans cette gamme de pression, l'existence d'une suroscillation au début de l'émission ne permet pas en effet de définir le temps de montée 10% - 90%.

Chaque symbole de la figure II.10 représente un enregistrement, le gaz dans la cavité a été changé entre chaque enregistrement. Les points sont relatifs à une série d'expériences réalisées à pression croissante, les triangles à une série réalisée à pression décroissante. Le léger décalage entre les deux courbes provient de ce que nous avons réaccordé la cavité à une pression de 28 mTorr (Point A). Ce décalage fortuit traduit la dépendance du temps de montée avec l'accord de la cavité.

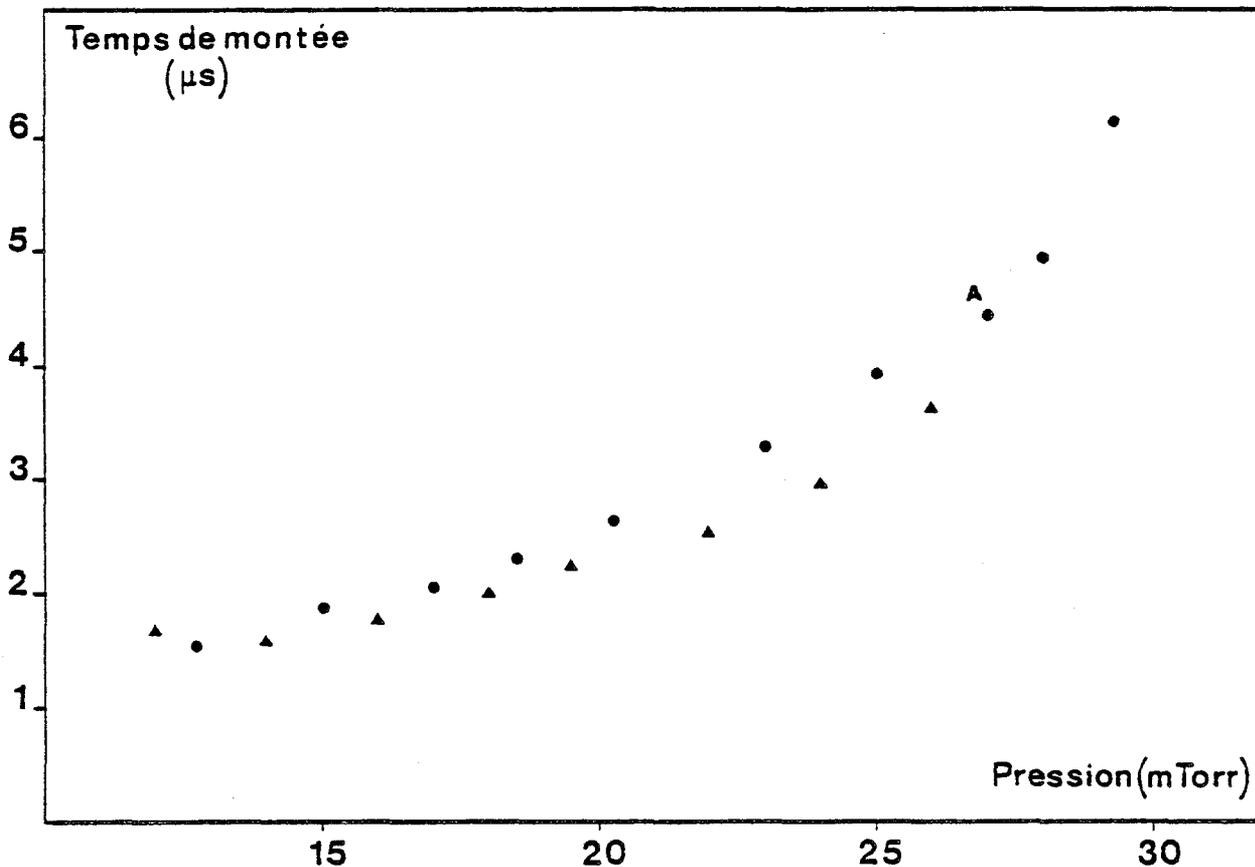


Figure II.10 : Emission à $742 \mu\text{m}$ de HCOOH (9R40), puissance de pompe 0.8 Watt. Evolution du temps de montée 10% - 90% de l'émission en fonction de la pression du milieu amplificateur. Les points sont relatifs à une série de mesures à pression croissante, la longueur de la cavité SMM a été réajustée en A et les triangles représentent une série de mesures faites à pression décroissante. L'écart entre les deux courbes montre l'influence de la fréquence d'accord de la cavité SMM.



La comparaison de cette figure avec la figure II.7 indique que la variation du temps de montée avec la pression est semblable à celle du délai, tout au moins pour les pressions supérieures à 10 mTorr. On peut aussi constater que la variation du délai est plus importante que celle du temps de montée. Toutefois la comparaison faite ici ne peut être que qualitative car la figure II.10 a été obtenue avec une puissance de pompe de 900 mW différente donc de celle de la figure II.7 (700 mW).

Cependant nous pouvons dire que si le délai est inversement proportionnel au gain, alors le temps de montée l'est aussi. Si le gain est faible, le temps de montée et le délai sont importants et vice versa.

L'analyse des résultats expérimentaux nous a permis de dégager un certain nombre de points que nous résumons ici.

L'ensemble des résultats désigne le gain global du laser comme le paramètre effectif de l'évolution de l'émission SMM. Nous avons vu que les valeurs du délai ainsi que du temps de montée sont liées au gain. Elles varient en effet en sens inverse de ce dernier et l'examen de l'évolution du délai nous a alors permis de préciser la dépendance du gain avec certains paramètres. De la même façon, nous avons vu l'influence du gain sur l'amplitude de l'émission en régime stationnaire, cette dernière évoluant dans le même sens que le gain.

Le rôle important du gain global dans l'évolution temporelle de l'émission est un résultat caractéristique de la théorie semi-classique du laser de Lamb [21]. D'autre part nous avons réalisé sur la raie à $742 \mu\text{m}$ de HCOOH (9R40) une série d'enregistrements dont l'allure est formellement identique à celle prévue par la dite théorie.

Nous allons donc maintenant exposer cette théorie dont nous comparerons ensuite les prévisions avec nos résultats expérimentaux.

II.2 COMPARAISON AVEC UNE THÉORIE SEMI-CLASSIQUE DU LASER

Avant d'exposer la théorie, nous allons expliciter les raisons justifiant l'utilisation de la théorie semi-classique.

La ressemblance formelle entre prévisions théoriques et courbes expérimentales si elle est une condition nécessaire n'est pas en soi suffisante car elle peut être fortuite. Reste alors l'argument de l'influence prépondérante du gain.

Cette dernière quantité est aussi privilégiée par la théorie quantique [23]. Nous avons donc le choix entre une théorie semi-classique et une théorie quantique qui a déjà été utilisée avec succès pour la description de la montée en oscillation de la raie à 6378 Å du laser He - Ne [24]. Cependant deux raisons distinctes nous permettent de trancher en faveur de la théorie semi-classique.

La première raison tient au fait que les prévisions de ces deux théories se confondent lorsque le nombre de photons est important. Or expérimentalement nous recueillons une puissance de l'ordre du milliwatt soit une densité photonique de l'ordre de 10^{13} (m⁻³) à 750 μm.

La seconde raison provient d'une différence essentielle entre les deux approches. En effet la théorie semi-classique nécessite la préexistence d'un champ de départ tandis que la théorie quantique prédit le démarrage de l'oscillation à partir du bruit quantique, i.e. à partir de l'émission spontanée. Cependant, ainsi que nous le montrerons ultérieurement, il existe un champ initial dans la cavité. Celui-ci est dû au rayonnement thermique de l'enceinte et son influence est supérieure à celle de l'émission spontanée.

Dès lors nous pouvons choisir sans restriction la théorie semi-classique. Cependant nous utiliserons quelques résultats de la théorie

quantique, relatifs à la statistique du nombre de photons.

Pour les émissions que nous avons étudiées, les conditions expérimentales sont telles que dans le cas le plus défavorable les largeurs Doppler et homogènes sont sensiblement du même ordre. Dans l'exposé de la théorie, nous nous limitons donc au cas où la transition d'émission est élargie de façon homogène.

En fin de cet exposé, nous donnons l'expression analytique de l'intensité de l'émission en fonction du temps, expression obtenue par un calcul au troisième ordre en champ.

II.2.I THEORIE SEMI-CLASSIQUE DU LASER - RAPPELS

On considère une cavité multimode de coefficients de qualité Q_n élevés. Dans cette cavité existe un champ électromagnétique classique agissant sur un milieu composé d'atomes (de molécules) décrits de façon quantique.

Le champ électromagnétique crée pour chaque atome (molécule) un dipole induit conduisant à une polarisation macroscopique $P(r,t)$ du milieu. Conformément aux équations de Maxwell, cette polarisation est une source de rayonnement électromagnétique. Les amplitudes et les fréquences des oscillations possibles sont alors données par la condition d'auto-cohérence du champ : le champ inducteur est identique au champ induit.

II.2.I.A - EQUATIONS D'AUTO-COHERENCE

Suivant les équations de Maxwell, le champ électrique E obéit à une équation de propagation :

$$\text{rot rot } E + \mu_0 \sigma \frac{\partial E}{\partial t} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = - \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}$$

P est la polarisation macroscopique $P(r,t)$, μ_0 et ϵ_0 ont leur signification habituelle et σ est une conductivité ohmique introduite pour rendre compte des pertes de la cavité.

FOX et LI [25] ont montré que pour les modes de symétrie élevée la variation latérale du champ électrique est faible, celui-ci peut être alors assimilé à une onde plane et $\text{rot rot } E$ s'écrit donc $\partial^2 E / \partial z^2$ où z est la coordonnée axiale.

On admet aussi qu'une sélection de la direction de polarisation est réalisée ce qui nous permet d'omettre le caractère vectoriel du champ et de la polarisation.

Si E n'est fonction spatialement que de z , il en sera de même de P qui sera écrit $P(z,t)$. D'autre part, pour le $n^{\text{ième}}$ mode longitudinal de la cavité, on a la fonction propre (non normalisée)

$$U_n(z) = \sin K_n z$$

où K_n est le nombre d'onde = $n\pi/L$, n est un entier grand et L la longueur du milieu. En présence d'une polarisation donnée $P(z,t)$, les oscillations quasi-stationnaires forcées du champ électrique peuvent être développées suivant les fonctions propres des modes, soit :

$$E(z,t) = \sum_n A_n(t) U_n(z)$$

Les différentes fonctions propres des modes étant orthogonales l'amplitude A_n obéit alors à l'équation différentielle d'un oscillateur harmonique simple forcé et amorti, de la forme :

$$\frac{\partial^2 A_n}{\partial t^2} + \left(\frac{\sigma}{\epsilon_0}\right) \frac{\partial A_n}{\partial t} + \Omega_n^2 A_n = -\frac{1}{\epsilon_0} \frac{\partial^2 P_n(t)}{\partial t^2}$$

où Ω_n est la fréquence propre du $n^{\text{ième}}$ mode de la cavité et P_n est la projection spatiale de la polarisation $P(z,t)$ sur le mode considéré.

D'autre part le champ E étant quasi-monochromatique à la fréquence ν de l'émission, il en sera de même pour la polarisation. On écrira donc $\partial^2 P_n(t)/\partial t^2 = -\nu_n^2 P_n$. En introduisant le coefficient de qualité du n^{ième} mode Q_n sous la forme $\sigma = \epsilon_0 \nu_n/Q_n$, il vient alors :

$$\frac{\partial^2 A_n}{\partial t^2} + \left(\frac{\nu_n}{Q_n} \right) \frac{\partial A_n}{\partial t} + \Omega_n^2 A_n = \left(\frac{\nu_n^2}{\epsilon_0} \right) P_n$$

Si maintenant, la séparation en fréquence des modes principaux est plus importante que la largeur de résonance de la cavité ($\sim \nu_n/Q$), on peut négliger pour A_n et P_n les composantes dont la fréquence est loin de celle du mode considéré de la cavité Ω_n . On peut alors écrire

$$A_n(t) = \frac{1}{2} E_n(t) \exp -i [\nu_n t + \phi_n(t)] + \text{complexe conjugué} \quad (1)$$

$$P_n(t) = \frac{1}{2} P_n(t) \exp -i [\nu_n t + \phi_n(t)] + \text{C.C} \quad (2)$$

où E_n et P_n sont les amplitudes complexes du champ et de la polarisation, $\nu_n + \phi_n$ est la fréquence instantanée de l'émission. Les quantités E_n , P_n et ϕ_n ont été posées dépendantes du temps pour rendre compte éventuellement des phénomènes transitoires au démarrage de l'émission.

Si l'on suppose que les amplitudes E_n et P_n ainsi que la phase ϕ_n sont des fonctions lentement variables du temps sur une période optique ($\sim 1/\nu_n$), il vient pour les équations d'auto-cohérence:

$$(\nu_n + \dot{\phi}_n - \Omega_n) E_n = \frac{1}{2} \frac{\nu}{\epsilon_0} \text{Re}(P_n) \quad (3)$$

$$\ddot{E}_n + \frac{1}{2} \cdot \frac{\nu}{Q_n} E_n = -\frac{1}{2} \frac{\nu}{\epsilon_0} \text{Im}(P_n) \quad (4)$$

où l'on a de plus supposé les pertes et la polarisation faibles.

La détermination complète de ces équations rend maintenant nécessaire le calcul de la polarisation, ce que nous abordons ci-après. Nous nous limitons au cas où l'oscillation n'a lieu que pour un mode de la cavité, dans la suite on omettra donc les indices n .

II.2.I.B - CALCUL DE LA POLARISATION

Pour ce calcul, on suppose que le champ se propage dans un milieu composé d'atomes (de molécules) immobiles. Le milieu est alors considéré comme un ensemble de systèmes à deux niveaux a et b élargis de façon homogène et dont la fréquence de transition est $\omega = [E_a - E_b]/\hbar$.

Un "atome" excité dans l'état α ($= a$ ou b) à l'instant t_0 et à l'abscisse z est décrit à l'instant t par une matrice densité $\rho(\alpha, z, t_0, t)$. Les "atomes" sont excités dans l'état α à un flux $\lambda_\alpha(z, t_0)$, nombre d'"atomes" excités par unité de temps et de volume. Les constantes de relaxation des niveaux a et b sont notées γ_a et γ_b tandis que les éléments non diagonaux ρ_{ab} décroissent à un taux $\gamma = \gamma_{ab} + \gamma_{ph}$. $\gamma_{ab} = (\gamma_a + \gamma_b)/2$ et γ_{ph} est une relaxation due à des collisions élastiques sans changement d'état quantique (collision avec interruption de phase).

La polarisation macroscopique $P(z, t)$ pour ce milieu est donnée par la contribution de tous les "atomes" compte tenu de leur état initial d'excitation et de l'instant t_0 de cette excitation.

$$P(z, t) = \sum_{\alpha} \int_{\tau}^t \lambda_{\alpha}(z, t_0) \langle p \rangle dt_0$$

$\langle p \rangle = \text{trace}(\rho \mu)$, valeur moyenne du moment dipolaire des atomes excités à l'instant t_0 en z .

τ est l'instant où commence l'excitation, par la suite on posera $\tau = 0$ origine des temps.

La projection de P sur le mode considéré nous permet d'obtenir l'expression de la polarisation complexe P .

$$P = 2 \mu \exp(i\nu t + \Phi) \times \frac{1}{N} \int_0^L dz U_n^* \sum_{\alpha} \int_0^t dt_0 \lambda_{\alpha}(z, t_0) \rho_{ab}(\alpha, z, t_0, t) \quad (5)$$

avec $N = \int_0^L dz |U_n z|^2$ facteur de normalisation

Il est alors intéressant d'introduire la matrice densité $\rho(z, t)$ moyennée sur l'instant et l'état d'excitation initial. Celle-ci est définie par :

$$\rho(z, t) = \sum_{\alpha} \int_0^t dt_0 \lambda_{\alpha}(z, t_0) \rho(\alpha, z, t_0, t)$$

En remarquant que :

$$\overset{\circ}{\rho}(z, t) = \sum_{\alpha} \lambda_{\alpha}(z, t) \rho(\alpha, z, t_0, t) + \sum_{\alpha} \int_0^t \lambda_{\alpha}(z, t_0) \overset{\circ}{\rho}(\alpha, z, t_0, t) dt_0$$

où le signe \circ désigne une dérivation par rapport à t et où l'on a par définition $\rho_{ij}(\alpha, z, t_0, t) = \delta_{ij} \delta_{j\alpha}$. Il vient pour les équations du mouvement de $\rho(z, t)$

$$\overset{\circ}{\rho}_{\alpha\alpha} = \lambda_{\alpha} - \gamma_{\alpha} \rho_{\alpha\alpha} + (-1)^{\delta_{\alpha\alpha}} [i\hbar^{-1} V_{ab} \rho_{ba} + C.C.] \quad (6)$$

$$\overset{\circ}{\rho}_{ab} = - (i\omega + \gamma) \rho_{ab} + i\hbar^{-1} V_{ab}(z, t) [\rho_{aa} - \rho_{bb}] \quad (7)$$

où $V(z, t)$ est la perturbation induite par le champ E .

L'équation (7) s'intègre en multipliant chaque membre par $\exp(i\omega + \gamma)t$ et l'on obtient :

$$\rho_{ab}(z, t) = i\hbar^{-1} \int_0^t dt' V_{ab}(z, t') [\rho_{aa}(z, t') - \rho_{bb}(z, t')] \exp[(i\omega + \gamma)(t' - t)] \quad (8)$$

Dans l'approximation résonnante la perturbation V_{ab} s'écrit :

$$V_{ab}(z, t) = -\frac{1}{2} \mu E \exp[-i(\nu t + \Phi)] U_n(z)$$

Si les variations de E , Φ et $[\rho_{aa} - \rho_{bb}]$ sont petites pendant un temps de l'ordre de γ^{-1} , (8) peut être calculé aisément en sortant ces termes de l'intégrale et il vient :

$$\rho_{ab}(z,t) = -\frac{i}{2} \frac{\mu E}{\hbar} \exp-i(\nu t + \Phi) \times U_n(z) \frac{\rho_{aa} - \rho_{bb}}{i(\omega - \nu) + \gamma} \quad (9)$$

En reportant cette valeur dans les équations (6), on obtient :

$$\dot{\rho}_{aa} = \lambda_a - \gamma_a \rho_{aa} - R(\rho_{aa} - \rho_{bb})$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \lambda_b - \gamma_b \rho_{bb} + R(\rho_{aa} - \rho_{bb})$$

où l'on a posé $R = R(z,t) = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu E}{\hbar}\right)^2 |U_n(z)|^2 \gamma[\gamma^2 + (\omega - \nu)^2]^{-1}$

$R(\rho_{aa} - \rho_{bb})$ désigne le flux de molécules passant de a à b sous l'influence de la perturbation due au champ E . Si on admet que l'inversion $(\rho_{aa} - \rho_{bb})$ varie peu pendant γ^{-1} (*) qui est le temps maximum de l'évolution des cohérences ρ_{ab} , on peut prendre pour valeur de l'inversion dans (9) celle donnée par $\dot{\rho}_{aa} - \dot{\rho}_{bb} = 0$ soit :

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = N(z) [1 + R/R_S]^{-1} \quad (10)$$

où l'on a posé :

$$N(z) = [\lambda_a \gamma_b - \lambda_b \gamma_a] [\gamma_a \gamma_b]^{-1}$$

et $R_S^{-1} = (\gamma_a + \gamma_b)(\gamma_a \gamma_b)^{-1}$

En combinant les relations (5), (9) et (10), on obtient pour la polarisation complexe P

$$P(t) = -\frac{\mu^2}{\hbar} E \frac{(\omega - \nu) + i\gamma}{(\omega - \nu)^2 + \gamma^2} \times \frac{1}{N} \int_0^L dz \frac{|U_n(z)|^2 N(z)}{1 + R(z)/R_S}$$

(*) Notons que si la fréquence de Rabi $(\frac{\mu E}{\hbar})$ est petite devant γ alors le taux de transition R de a vers b l'est aussi, si de plus le pompage (λ_a, λ_b) évolue moins vite que γ alors on peut admettre que l'inversion varie peu pendant γ^{-1} [31].

Dans le cas où $N(z)$ varie peu sur une longueur d'onde optique, cas du champ faible, on obtient :

$$P(t) = -\frac{\mu^2}{\hbar} \cdot E \cdot N \cdot \frac{(\omega - \nu) + i\gamma}{(\omega - \nu)^2 + \gamma^2} f(K) \quad (11)$$

$$\text{où } f(K) = \frac{2}{K} [1 - (1+K)^{1/2}]$$

$$K = \frac{2 \gamma_{ab} \mu^2 I}{\gamma_a \gamma_b \epsilon_0 c \hbar^2} \times \frac{\gamma}{(\omega - \nu)^2 + \gamma^2}$$

$$\text{où l'on a posé } I = \frac{1}{2} \left(\frac{\epsilon_0}{\mu_0}\right)^{1/2} E^2 \text{ intensité du champ } E \text{ (en } W/m^2)$$

et N densité moyenne d'inversion de population réalisée.

II.2.1.C - EVOLUTION TEMPORELLE DU CHAMP ET DE LA FREQUENCE D'OSCILLATION

De l'expression (11) on tire $\text{Im}(P)$ et $\text{Re}(P)$. Dans le cas où le champ reste faible on peut faire un développement limité de la polarisation en fonction du paramètre K proportionnel à l'intensité I . Un développement au second ordre permet d'obtenir l'expression de la polarisation au troisième ordre en fonction du champ. En reportant dans les équations d'auto-cohérence (3) et (4), on obtient :

$$\nu + \dot{\Phi} = \Omega + \sigma - \rho I \quad (12)$$

$$\dot{I} = 2I (\alpha - \beta I) \quad (13)$$

où l'équation de l'intensité (13) est obtenue en multipliant chaque membre de l'équation en champ (4) par la quantité

$$\frac{1}{2} \left(\frac{\epsilon_0}{\mu_0}\right)^{1/2} E. \text{ Les coefficients entrant alors dans les équations (12)}$$

et (13) sont donnés dans le tableau I.

Tableau I : Expression des paramètres utilisés dans les équations de l'intensité et de la fréquence d'oscillation

$$\alpha = L(\omega-\nu)F_1 - (\nu/2Q) \quad \text{gain linéaire global (gain-pertes)}$$

$$\beta = L^2(\omega-\nu)F_3 \quad \text{paramètres de saturation}$$

$$L(\omega-\nu) = \gamma^2 [\gamma^2 + (\omega-\nu)^2]^{-1} \quad \text{Lorentzienne non normalisée}$$

$$\sigma = \gamma^{-1}(\omega-\nu)L(\omega-\nu)F_1 \quad \text{"mode pulling"}$$

$$\rho = (\gamma^{-1})(\omega-\nu)L^2(\omega-\nu)F_3 \quad \text{"mode pushing"}$$

$$F_1 = \frac{1}{2} \frac{\nu \mu^2 N}{\epsilon_0 \hbar \gamma} \quad \text{facteur du 1er ordre (en champ)}$$

$$F_3 = \frac{3}{2} \frac{\gamma_{ab} \mu^2}{\gamma \gamma_a \gamma_b \hbar^2 \epsilon_0 c} F_1 \quad \text{facteur du 3è ordre (en champ)}$$

$$\omega \quad \text{fréquence propre de la transition}$$

$$\Omega \quad \text{fréquence propre de la cavité}$$

$$\nu \quad \text{fréquence de l'oscillation en régime stationnaire}$$

$$\mu \quad \text{moment dipolaire de la transition}$$

$$N \quad \text{densité d'inversion de population (molécules m}^{-3}\text{)}$$

La valeur de l'intensité en régime stationnaire est alors donnée par :

$$I_S = \frac{\alpha}{\beta} = \frac{2}{3} \frac{\gamma \gamma_a \gamma_b \hbar^2 \epsilon_0 c}{\gamma_{ab} \mu^2} \times \frac{L(\omega - \nu) - M^{-1}}{L^2(\omega - \nu)} \quad (14)$$

où l'on a posé $M = N/N_T$ avec N_T définie comme l'inversion de population au seuil d'oscillation à la résonance ($\omega = \nu = \Omega$). Le seuil d'oscillation étant atteint pour $\alpha = 0$ on a

$$N_T = \epsilon_0 \hbar \gamma / Q \mu^2$$

De la même façon, on tire de (12) la fréquence d'oscillation en régime stationnaire.

$$\nu = [\gamma \Omega + \eta \omega] [\gamma + \eta]^{-1} \quad (15)$$

où l'on a posé $\eta = \nu/2Q$, les pertes en intensité de la cavité valent 2η . L'équation (15) peut s'interpréter comme l'équation du "centre de masse" des fréquences ω et Ω . Celles-ci interviennent avec des "poids" respectifs γ et η , l'ensemble étant normalisé par la somme des poids.

L'équation (13) s'intègre aisément et l'on obtient la loi de variation temporelle de l'intensité :

$$I(t) = \frac{\alpha I_0 (\alpha - \beta I_0)^{-1} \exp 2\alpha t}{1 + \beta I_0 (\alpha - \beta I_0)^{-1} \exp 2\alpha t} \quad (16)$$

où I_0 est la valeur de l'intensité à $t = 0$. On peut remarquer que I_0 nul implique I nul. Ce modèle nécessite donc la préexistence d'un champ dans la cavité. Généralement celui-ci est considéré comme au moins fourni par le rayonnement thermique.

Nous avons obtenu la loi de dépendance temporelle de l'intensité du champ émis, ainsi que l'expression des divers paramètres régissant cette intensité (Tableau I). Dans le point suivant, nous comparons nos résultats expérimentaux avec ceux donnés ici.

II.2.II COMPARAISON EXPERIENCE-THEORIE

L'expression (16) donnant la loi de variation temporelle de l'intensité peut se réécrire simplement :

$$I = I_0 \times \frac{(\alpha/\beta I_0)}{1 - (1-\alpha/\beta I_0) \exp(-2\alpha t)} \quad (17)$$

D'autre part les courbes expérimentales dont nous disposons sont proportionnelles à l'intensité. L'adaptation de la forme théorique aux courbes expérimentales ne requiert donc que l'ajustement de deux paramètres par courbes, qui sont α et $(\alpha/\beta I_0)$. La figure II.11 montre le résultat de cette adaptation, les points représentent les valeurs théoriques et la courbe expérimentale est donnée par une ligne continue. Les paramètres adaptés correspondant à chaque courbe sont donnés dans le Tableau II ci-après.

Tableau II : Paramètres expérimentaux obtenus par ajustement de la forme théorique de l'intensité.

Courbe	Puissance IR	$\alpha/\beta I_0$	$\alpha(\text{sec}^{-1})$	$T_R'(\mu\text{s})$	$T_R(\mu\text{s})$
a	900 mW	$3.26 \cdot 10^{15}$	$1.7 \cdot 10^6$	4.8	4.4
b	800 mW	$2.7 \cdot 10^{15}$	$1.46 \cdot 10^6$	5.8	6
c	680 mW	$1.75 \cdot 10^{15}$	$1.11 \cdot 10^6$	7.6	7.7
d	560 mW	$1.3 \cdot 10^{15}$	$.858 \cdot 10^6$	9.5	9.8

Il est à noter que pour pouvoir être présentés sur une même figure, les enregistrements expérimentaux ont été décalés. Ce décalage a été obtenu expérimentalement en introduisant un retard entre l'application du pompage et le déclenchement du moyennage numérique. L'adaptation de la forme théorique requiert alors l'introduction et l'adaptation de ce retard. Les deux dernières colonnes du tableau II sont relatives à ces

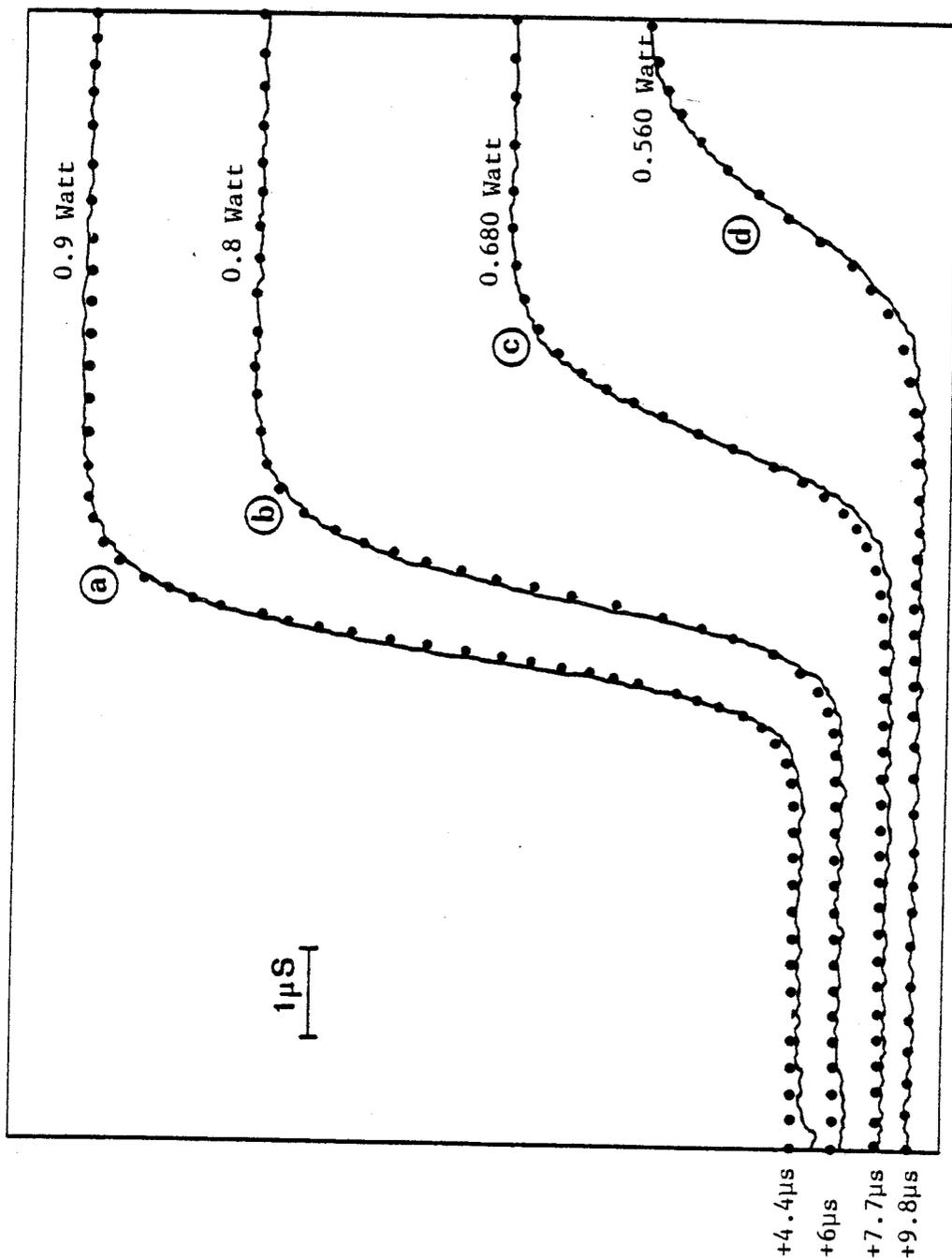


Figure II.11 : Emission à 742 μm de HCOOH (9R40), pression du milieu amplificateur 20 mTorr. Evolution temporelle de l'émission SMM pour différentes valeurs de la puissance de pompe. Lignes continues : enregistrements expérimentaux ; points : valeurs théoriques calculées avec les paramètres du tableau II. Les temps indiqués sont les mesures expérimentales de l'intervalle de temps entre l'application du pompage et le début des enregistrements.

quantités : T_R est la valeur mesurée du retard introduit expérimentalement, T'_R la valeur du paramètre adapté. L'écart entre les valeurs obtenues est de l'ordre de grandeur de la précision de mesure expérimentale.

Les valeurs données dans le tableau II sont les valeurs expérimentales des paramètres adaptés. A partir des expressions des divers paramètres donnés dans le tableau I (cf page 84), nous pouvons calculer leurs valeurs théoriques et les comparer à celles obtenues expérimentalement. Dans un premier temps nous examinons la valeur du gain global α et dans un second temps celle de l'intensité en régime stationnaire $I_S = (\alpha/\beta)$. Dans un troisième temps enfin, nous étudions de façon plus qualitative l'évolution du délai et donc du gain avec les différents paramètres expérimentaux.

II.2.II. A - GAIN LINEAIRE GLOBAL

A la résonance ($\nu = \omega = \Omega$), le gain linéaire global s'écrit :

$$\alpha = \frac{1}{2} \frac{\nu \mu^2 N}{\epsilon_0 \hbar \gamma} - \eta \quad (18)$$

Dans cette expression, la seule quantité qui dépend de la puissance de pompe est la densité d'inversion de population réalisée N . Nous avons vu à partir de la figure II.8 qu'à une pression de 20 mTorr, la transition IR n'est pas saturée et donc que l'inversion de population est alors proportionnelle au pompage. Sur la figure II.12 nous avons tracé avec les données du tableau II, α en fonction de la puissance de pompe. On obtient alors une droite ce qui confirme la non saturation de la transition IR. α peut alors s'écrire :

$$\alpha = A P_{IR} - B$$

où A est la pente de la courbe $\sim 2.5 \cdot 10^6 \text{ sec}^{-1} \text{ Watt}^{-1}$, suivant les valeurs du tableau

et B est l'ordonnée à l'origine qui représente donc la valeur des pertes,

on trouve alors :

$$B \equiv \eta \approx .5 \cdot 10^6 \text{ sec}^{-1}$$

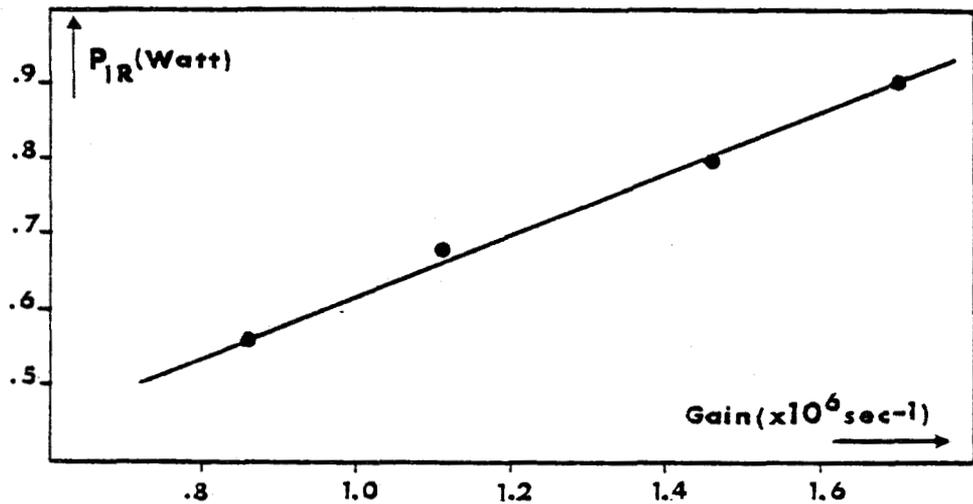


Figure II.12 : Valeurs expérimentales du gain en fonction de la puissance IR de pompe dans les conditions de la figure II.11.

Rappelons que les pertes théoriques de la cavité [cf préambule] sont de l'ordre de 1% par passage aller-retour. La cavité mesure 1.3 m ces pertes sont donc de l'ordre de 10^{-2} pour 10 ns soit 10^6 sec^{-1} . Il y a donc concordance entre les valeurs trouvées.

Montrons maintenant que la valeur trouvée pour A est compatible avec les conditions expérimentales. Il faut pour cela déterminer la valeur de la densité d'inversion réalisée N.

L'expression de N en fonction du pompage s'obtient aisément à partir d'un modèle simple à 3 niveaux qui sont le niveau de base de la transition IR (densité de population N_3), le niveau supérieur de la

transition SMM (N_2) et le niveau inférieur de cette même transition (N_1). On a alors $N = N_2 - N_1$. L'échelle de temps des phénomènes considérés fait que l'on peut négliger les effets d'engorgement vibrationnel décrits au chapitre précédent. On peut alors considérer N_1 négligeable devant N_2 et de la même façon on pourra supposer la population du niveau 3 constante et égale à $f_3 N_0$; f_3 est la probabilité d'occupation du niveau 3 à l'équilibre thermodynamique et N_0 la densité de molécule (m^{-3}). Si l'on appelle W le taux de transition dû au champ IR et γ le taux de relaxation rotationnelle ($=2\pi\Delta\nu$). On obtient alors pour l'inversion :

$$N = f_3 N_0 W / (W + \gamma)$$

Cette valeur de N est une valeur quasi-stationnaire (on ne tient pas compte de l'engorgement vibrationnel) atteinte au bout d'un temps de l'ordre de γ^{-1} , soit $0.5 \mu s$ dans nos conditions expérimentales (20 mTorr). Ce temps est négligeable devant le délai observé et reste du même ordre que la précision de mesure expérimentale du délai, nous pouvons donc utiliser cette valeur de N .

D'autre part, nous avons utilisé la constante γ , dont nous sommes servis au chapitre I pour décrire la relaxation. Pour les transitions SMM moléculaires γ_{ph} est négligeable devant γ_{ab} ; γ est donc identique à celui de la théorie de Lamb et on a $\gamma = \gamma_{ab} = 2\pi\Delta\nu$.

La détermination de N nécessite maintenant d'explicitier le taux de transitions induites par le champ IR : W . La transition IR n'étant pas saturée, nous utiliserons pour W l'expression du taux moyen de transition dans le cas d'un élargissement inhomogène dominant [26]. Soit :

$$W = \frac{2\pi F(\omega_1) \gamma |x|^2}{\sqrt{\gamma^2 + 4|x|^2}}$$

où $|x|^2 = (\mu_0^2 I) / (\epsilon_0 c 2\hbar^2)$ avec μ_0 moment dipolaire de la transition IR et I intensité du rayonnement de pompe.

$$F(\omega_1) = \left(\frac{\text{Log}2}{\pi}\right)^{1/2} \frac{1}{\Delta\omega_0} \exp \left[-\text{Log}2 \left(\frac{\omega_0 - \omega_1}{\Delta\omega_0} \right)^2 \right]$$

ω_0 fréquence propre de la transition IR

ω_1 fréquence du rayonnement de pompe

$\Delta\omega_0$ largeur Doppler de la transition (HCOOH .9 KHz/GHz)

Cette expression est un taux moyen de transition pour toutes les molécules quelles que soient les classes de vitesse auxquelles elles appartiennent, il n'y a donc pas lieu de tenir compte des vitesses des molécules.

D'autre part, l'intensité I du rayonnement de pompe peut s'approximer en fonction de la puissance injectée dans la cavité $I = P_{IR}/S$; S étant la surface du faisceau de pompe dans la cavité égale à la surface du mode SMM ($\approx \pi w^2(L)$).

L'écart entre la fréquence du laser CO_2 et la fréquence d'absorption IR est pour la raie à 742 μm de HCOOH (9R40) de l'ordre de 20 MHz [5], la modulation acousto-optique décalant la fréquence de 40 MHz, on a donc ici $|\omega_0 - \omega_1| \approx 20$ MHz.

En prenant pour μ_0 et μ les valeurs standards 0,1 et 1 Debye, et pour f_3 : $1.4 \cdot 10^{-4}$, on obtient les résultats suivants :

- la valeur moyenne de $A = (\partial\alpha/\partial P_{IR})$ pour P_{IR} compris entre .58 et .9 W est de $2.35 \cdot 10^6$, ce qui est en bonne concordance avec ce que nous avons trouvé expérimentalement.

- les valeurs de α sont bien reproduites et l'on obtient pour valeur moyenne des pertes $\eta \approx 1.15 \cdot 10^6$

Compte tenu de la simplicité du modèle utilisé, nous pouvons donc dire que la valeur du gain global est bien décrite par la théorie. Faisons cependant deux remarques avant d'examiner la valeur de l'intensité en régime stationnaire.

D'une part la valeur de f_3 peut sembler faible, or nous n'avons pas tenu compte de la population du niveau 1 qui du fait des collisions moléculaires est en première approximation proportionnelle à celle du niveau 2. Ceci intervient comme un facteur de réduction de l'inversion que nous avons calculée, et dès lors la valeur de f_3 se rapproche de la valeur expérimentale ($\sim 10^{-3}$).

D'autre part les valeurs trouvées pour les pertes η ne sont pas identiques quoique du même ordre de grandeur. On peut apporter à ceci une réponse simple : en effet B est déterminé par extrapolation linéaire alors qu'un calcul montre que le gain α n'est pas rigoureusement une fonction linéaire de P_{IR} . Ceci peut expliquer la différence observée.

II.2.II.B - INTENSITE EN REGIME STATIONNAIRE I_S

La valeur théorique de l'intensité en régime stationnaire est donnée par : $I_S = \alpha/\beta$. Pour se placer dans le cas de nos conditions expérimentales on peut obtenir cette valeur en écrivant α et β à la résonance. Toutefois la quantité déterminée expérimentalement est (I_S/I_0) : rapport de l'intensité en régime stationnaire et de l'intensité de départ. La démarche que nous adoptons ici est alors la suivante : dans un premier temps nous calculons I_S théorique soit (α/β) . La comparaison des valeurs de I_S théorique et (I_S/I_0) expérimentale nous permet alors de déterminer I_0 de façon semi-expérimentale. Dans un second temps nous essayons alors de déterminer théoriquement la valeur de I_0 et dans un troisième temps, nous commentons les résultats obtenus.

I_S théorique

La valeur de I_S à la résonance est donnée par l'expression :

$$I_S = \frac{2}{3} \frac{\gamma}{\gamma_{ab}} \frac{\hbar^2 \gamma_a \gamma_b \epsilon_0 c}{\mu^2} \left[1 - \frac{\eta}{f_3} \frac{2 \epsilon_0 \hbar \gamma}{\nu \mu^2 N} \frac{W+\gamma}{W} \right]$$

où l'on a utilisé de même que précédemment $N = f_3 N_0 W/(W+\gamma)$

En remarquant que $\gamma \approx \gamma_a \approx \gamma_b$ et en prenant pour n/f_3 la valeur $1.2 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$, on obtient les résultats donnés dans le tableau III ci-après.

Tableau III : Valeurs de I_S théorique

P_{IR} (Watt)	I_S (Watt m^{-2})	I_0 (Watt m^{-2})	P_{SMM} (Watt)	Rendement en puissance	Rendement Photonique
.9	3.86	$1.18 \cdot 10^{-15}$	$4.8 \cdot 10^{-3}$	$5.3 \cdot 10^{-3}$	0.8
.8	3.27	$1.21 \cdot 10^{-15}$	$4 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3}$	0.75
.68	2.36	$1.35 \cdot 10^{-15}$	$2.9 \cdot 10^{-3}$	$4.3 \cdot 10^{-3}$	0.65
.56	1.06	$.78 \cdot 10^{-15}$	$1.26 \cdot 10^{-3}$	$1.8 \cdot 10^{-3}$	0.27

La valeur de I_0 a été obtenue en divisant I_S théorique par la valeur expérimentale trouvée pour $(\alpha/\beta I_0)$. La constance de cette valeur rend compte de l'adaptation du calcul théorique pour la valeur de I_S .

La puissance submillimétrique est obtenue par $P_{SMM} = I_S \times S$ où S est la surface du mode SMM ; les valeurs trouvées de l'ordre du milliwatt sont correctes compte tenu des conditions expérimentales.

Le rendement en puissance est simplement donné par le rapport de la puissance IR injectée dans la cavité et de la puissance SMM recueillie. Cette quantité doit être comparée au rendement théorique maximal donné par $(\nu_{SMM}/2\nu_{IR})$; on obtient ainsi le rendement photonique, i.e. le rapport du nombre de photons SMM réellement présents sur le nombre de photons possibles. La dernière colonne du tableau III donne les valeurs de ce rendement photonique.

On voit ici que dans nos conditions expérimentales, le rendement est quasi-maximal. Une remarque s'impose toutefois : en effet les rendements

ont été calculés à partir de la puissance en régime stationnaire. Or nous avons vu l'existence d'un délai entre l'application du pompage et l'apparition de l'émission ; ce délai n'est pas négligeable ici puisqu'il est de l'ordre d'une dizaine de microsecondes. Le rendement en énergie est alors moins élevé que le rendement en puissance défini à partir du régime stationnaire. Si maintenant, on observe l'émission SMM pendant un temps plus long, les rendements en énergie et en puissance vont se confondre. A plus longue échelle, ils vont tous deux diminuer du fait des effets mentionnés au chapitre I.

Toutefois, la valeur du rendement peut sembler élevée. Elle signifie en effet que pratiquement tous les photons IR sont absorbés et sont chacun responsable de l'émission d'un photon SMM. Or le processus d'émission stimulée est en compétition avec la relaxation rotationnelle rapide ici ($\sim 10^6 \text{ sec}^{-1}$) et l'on peut donc s'étonner d'obtenir un rendement aussi élevé. Nous poursuivrons la discussion à ce propos après avoir déterminé la valeur de l'intensité initiale I_0 .

Intensité de départ I_0

Intéressons nous maintenant à la valeur de l'intensité de départ I_0 . Expérimentalement on trouve pour I_0 une valeur de l'ordre de $10^{-15} \text{ W m}^{-2}$ (cf Tableau III). La question est maintenant de savoir d'où provient cette intensité et quel est son ordre de grandeur réel.

Deux cas sont possibles : elle provient soit du rayonnement thermique, soit de l'émission spontanée. Nous allons examiner successivement chacun de ces deux cas, en premier lieu le rayonnement thermique.

a) Rayonnement thermique

Il s'agit ici de calculer l'intensité du rayonnement thermique préexistant dans la cavité, et susceptible de déclencher l'émission

Nous allons alors montrer que pour la gamme des fréquences SMM, l'enceinte de la cavité peut être considérée comme un corps noir. Ensuite nous en déduirons l'intensité correspondante étant donné que seule l'intensité présente dans le mode fondamental est ici intéressante.

Le pouvoir émissif (luminance : $\text{W.m}^{-2} \text{ Stéradian}^{-1}$) à la fréquence ν d'un corps à la température T , s'exprime par :

$$E_{\nu.T} = \epsilon_{\nu.T} \times A_{\nu.T}$$

où $\epsilon_{\nu.T}$ est le pouvoir émissif à la fréquence ν du corps noir à la température T .

$$\epsilon_{\nu.T} = 2 \pi \hbar \nu^3 c^{-2} [\exp(\hbar\nu/kT) - 1]^{-1}$$

$A_{\nu.T}$ est le pouvoir absorbant à la fréquence ν du corps considéré à la température T . $A_{\nu.T}$ est aussi appelé albedo.

$$A_{\nu.T} = \frac{dW_{\text{abs}}}{dW_{\text{inc}}}$$

dW_{inc} = densité superficielle d'énergie incidente à la fréquence ν

dW_{abs} = densité superficielle d'énergie absorbée à la fréquence ν

dans le cas du corps noir $A_{\nu.T} = 1$

dans le cas d'un corps absorbant dont le coefficient d'absorption linéaire à la fréquence ν est $\alpha(\text{m}^{-1})$ on a la relation :

$$I = I_0 \exp - \alpha l$$

reliant l'intensité incidente I_0 à l'intensité I après un parcours l dans le milieu, le pouvoir absorbant s'écrit alors simplement :

$$A_{\nu.T} = (I_0 - I) / I_0 = 1 - \exp - \alpha l$$

Le coefficient d'absorption linéaire du pyrex constituant l'enceinte de la cavité est de 75 cm^{-1} à $300 \mu\text{m}$ [27] tandis que l'épaisseur de l'enceinte est de 0.5 cm . On peut alors considérer le pouvoir absorbant

de l'enceinte comme très voisin de 1 pour toute la gamme des fréquences SMM. L'enceinte de la cavité sera donc assimilée à un corps noir.

Dès lors la densité d'énergie dans la cavité est celle du corps noir mais seule nous intéresse l'énergie contenue dans le mode fondamental. Pour simplifier, ce mode fondamental est assimilé à un tube de longueur égale à celle de la cavité (L) et de section πw^2 (w rayon du faisceau sur le miroir sphérique). D'autre part, il faut aussi considérer que cette énergie fournie par le corps noir se propage dans toutes les directions et que seule contribue à l'intensité initiale l'énergie se propageant dans des directions telles que celle-ci ne sorte pas du tube défini précédemment. Nous sommes ainsi amenés à définir une densité "utile" dont on calculera le flux par unité de temps et de surface, i.e. l'intensité.

La densité d'énergie pour les fréquences comprises entre ν et $\nu+d\nu$ est :

$$\rho(\nu)d\nu = (4/c) \epsilon_{\nu} T d\nu$$

Pour définir la densité d'énergie "utile", il faut déterminer pour chaque élément de volume dV du tube, l'angle solide Ω tel que l'énergie se propageant dans la direction Ω ne sorte pas du tube. (La cavité utilisée étant proche de la configuration semi-confocale ($L = R/2$) nous nous plaçons dans ce cas qui permet une simplification du calcul). Le diamètre du tube ($w \sim 2$ cm) étant petit devant la longueur de ce dernier (~ 1.3 m), on peut considérer l'énergie concentrée sur l'axe avec une densité "linéaire" $U = \rho(\nu) d\nu L^{-1}$. Ceci ne fait qu'amener une surévaluation de l'énergie utile.

Si x est la distance entre le miroir sphérique et l'élément rayonnant de densité Udx , on montre facilement que l'angle maximal α sous lequel peut se propager l'énergie en restant dans le tube, s'exprime par :

$$\alpha = w / (R-x)$$

cet angle est égal pour les deux directions possibles : soit vers le miroir sphérique soit vers le miroir plan. Compte tenu de la symétrie cylindrique du problème, l'angle solide défini par α est :

$$\Omega(x) = \pi w^2 (R-x)^{-2} \quad \text{où l'on a utilisé le fait que } \alpha \text{ est petit.}$$

La densité d'énergie utile $\rho'(v)dv$ est alors donnée par

$$\rho'(v)dv = \int_0^{R/2} U \times 2 \times \frac{\Omega(x)}{4\pi} dx = U w^2 / 2R$$

dont le flux par unité de temps et de surface dans une direction est :

$$\Phi(v)dv = I_0 = c \rho'(v)dv / 2$$

En utilisant les valeurs suivantes : $w = 2 \text{ cm}$

$$R = 3 \text{ m}$$

$$\lambda = 750 \text{ } \mu\text{m}$$

$$\text{on obtient } I_0 = \Phi(v)dv = 4 \times 10^{-18} \text{ } dv(\text{W/m}^2)$$

où l'on prend pour dv le domaine spectral dans lequel le rayonnement est susceptible d'être amplifié. Pour la raie à $742 \text{ } \mu\text{m}$ de HCOOH (9R40) les largeurs collisionnelles et Doppler sont du même ordre de grandeur, valant environ $5 \times 10^5 \text{ Hz}$ à 20 mTorr . Cette largeur détermine le domaine spectral précité et on obtient alors :

$$I_0 \approx 10^{-12} \text{ W m}^{-2}$$

Avant de discuter cette valeur, nous allons déterminer l'intensité initiale due à l'émission spontanée.

b) Emission spontanée

Dans le tube représentant le mode fondamental de la cavité, le nombre de photons émis par émission spontanée pendant un temps dt est

$\Delta N V dt$ où N est la densité d'inversion réalisée par le pompage, V le volume du mode et A le taux d'émission spontanée.

Les photons dont la direction de propagation est telle qu'ils sortent du tube sont considérés comme perdus, On introduit alors de même que précédemment un facteur correctif prenant en compte les directions efficaces et l'on obtient pour le nombre de photons utiles :

$$X \Delta N V dt \text{ où } X \text{ est donné par } (w^2/2R^2)$$

Il faut aussi tenir compte du fait qu'un certain nombre de ces photons seront perdus à cause des pertes de la cavité.

Pendant un intervalle de temps dt , la variation du nombre de photons utiles du mode fondamental est alors :

$$dn = X \Delta N V dt - 2 \eta n dt$$

avec 2η coefficient de pertes en intensité ou en nombre de photons.

Si on considère l'inversion N constante, le nombre de photons à l'instant t est donné par :

$$n(t) = N f(t) \text{ où } N = X \Delta N V / 2\eta \text{ et } f(t) = 1 - \exp -2\eta t$$

La densité d'énergie due à l'émission spontanée vaut alors à un instant t :

$$\rho(\nu, t) = X \Delta N h\nu (2\eta)^{-1} f(t)$$

et le flux par unité de temps et de surface est :

$$I_0(t) = c \rho(\nu, t)$$

Le taux d'émission spontanée est donné par le coefficient d'Einstein

$$A = (\mu^2 \nu^3) [\epsilon_0 \hbar \pi c^3]^{-1}$$

En utilisant les mêmes valeurs que précédemment, on obtient pour l'intensité due à l'émission spontanée

$I_0 \approx P \times 10^{-14} \times f(t)$ en $W.m^{-2}$ où P , puissance IR injectée dans la cavité, est donnée en Watt.

Nous allons maintenant comparer les valeurs obtenues pour l'intensité initiale, valeurs dues à deux processus distincts.

Discussion des valeurs de I_0 et I_s

a) Valeur de I_0

La puissance de pompe lors de nos expériences étant de l'ordre du Watt, l'intensité due au rayonnement thermique est alors environ 100 fois supérieure à l'intensité maximale provenant de l'émission spontanée. Remarquons aussi que cette dernière est obtenue en un temps de quelques microsecondes, alors que l'inversion étant créée environ en $0.5 \mu s$, le processus d'émission stimulée est déjà commencé. L'intensité initiale I_0 à prendre en compte est donc celle due au rayonnement thermique. Il est cependant nécessaire de faire deux remarques sur la valeur calculée de I_0 .

Premièrement, cette valeur est sous évaluée par rapport à celle de l'émission spontanée pour la raison suivante. Dans le taux d'émission spontanée, toutes les fréquences possibles d'émission sont prises en compte, alors que dans notre calcul de I_0 thermique nous n'avons considéré en fait que les fréquences les plus probables ($\sim \nu$).

Deuxièmement les deux valeurs trouvées sont surévaluées de la même manière et ce pour deux raisons distinctes. Une première surévaluation intervient dans le calcul de la densité d'énergie ou du nombre de photons utiles du fait que l'on a considéré aussi bien la densité d'énergie que la densité d'inversion concentrée sur l'axe du mode. La seconde surévaluation provient de ce que nous n'avons pas considéré la polarisation des rayonnements. La cavité utilisée n'assurant pas de sélection de la direction de polarisation, les deux rayonnements précédemment définis ont donc

une polarisation quelconque. Or la théorie semi-classique se réfère à un milieu où l'on a effectué une sélection de la polarisation, celle de I_0 doit alors aussi être définie.

Remarquons toutefois que l'émission SMM stimulée est polarisée et donc que la théorie s'applique. En effet le couplage des dipôles avec le champ de pompe fait que suivant le type de la transition IR (P,Q,R) et celui de la transition d'émission, le gain a une valeur plus élevée pour une direction de polarisation parallèle ou perpendiculaire à celle du champ de pompe [11,28].

Les remarques précédentes nous amènent donc à considérer comme correcte la valeur trouvée expérimentalement pour I_0 ($\approx 10^{-15}$ W m⁻²) et de même nous pouvons affirmer que cette intensité initiale provient du rayonnement thermique. Il serait alors intéressant de pouvoir mettre en évidence une variation de I_0 avec les conditions expérimentales. Un moyen possible serait de faire varier la température de l'enceinte ; toutefois une variation de température de l'ordre de 50°C n'amènerait qu'un changement de 20% de la valeur de I_0 , trop faible pour pouvoir être résolue notamment à cause de l'imprécision actuelle du calcul. Pour faire varier I_0 , on pourrait aussi utiliser un matériau parfaitement réfléchissant (albédo nul) ou travailler à d'autres fréquences. Les problèmes posés pratiquement par la comparaison d'expériences très différentes ou de réalisation très délicate rendent aléatoires de telles études.

b) Valeur de I_S

Nous avons vu précédemment que la valeur de I_S trouvée théoriquement conduit à un rendement quasi-égal au rendement théorique maximal

et nous nous interrogeons sur la crédibilité de la valeur trouvée. Remarquons maintenant que cette valeur comparée à celle de $\alpha/\beta I_0$ expérimentale impose la valeur de l'intensité de départ I_0 , i.e. si I_S augmente I_0 augmente et vice-versa. Or la valeur trouvée de cette façon s'avère compatible avec celle obtenue à partir du calcul du rayonnement thermique. La valeur de I_S doit donc elle aussi être correcte. Nous pouvons donc affirmer que dans les conditions expérimentales de cette expérience le rendement du laser SMM est quasi-maximal à l'échelle de temps considérée.

Ceci termine la partie quantitative à proprement parler de la comparaison expérience-théorie que nous poursuivons de façon plus qualitative dans le point suivant.

II.2.II.C - DELAI ET TEMPS DE MONTEE EN OSCILLATION

Présentation

Si l'on désigne par I_1 l'intensité SMM minimale détectable, le délai est alors simplement défini par l'intervalle de temps entre l'instant où le pompage est appliqué et celui où l'intensité SMM vaut I_1 . Compte tenu de l'expression de $I(t)$ (16) on obtient aisément

$$2 \alpha T_D = \text{Log}(I_1/I_0) + \text{Log}(I_S/(I_S - I_1)) \text{ avec } I_0 \text{ l'intensité initiale et } I_S \text{ intensité en régime stationnaire.}$$

Expérimentalement T_D a été défini avec I_1 inférieure à 1% de I_S (cf §II-1-II-B p.59). Or pour les enregistrements présentés sur la figure II.11, la quantité $2 \alpha T_D$ vaut environ 30. On peut donc négliger le terme $\text{Log}(I_S/(I_S - I_1))$ qui est inférieur à 0.1 dès que I_1 est inférieur à $I_S/10$. Ceci montre bien que la valeur du délai est peu affectée par l'imprécision de la détermination de I_1 par rapport à I_S , mais elle dépend évidemment de la valeur absolue de I_1 . Nous pouvons alors écrire :

$$T_D = \frac{1}{2\alpha} \text{Log} \frac{I_1}{I_0}$$

La valeur de $2 \alpha T_D$ pour les enregistrements précités nous permet d'obtenir l'ordre de grandeur de l'intensité SMM que nous pouvons détecter expérimentalement. En prenant $I_0 = 10^{-15} \text{ W m}^{-2}$ on obtient $I_1 \approx 10^{-2} \text{ W m}^{-2}$. Notons que cette valeur correspond effectivement au centième de l'intensité en régime stationnaire que nous avons calculée (cf Tableau III).

D'autre part remarquons que I_1 est relatif à une densité dans la cavité, expérimentalement nous ne pouvons mesurer que l'intensité à la sortie du coupleur. Le coefficient de couplage étant voisin de 1%, nous pouvons donc détecter une intensité de l'ordre de $10^{-8} \text{ W cm}^{-2}$. Cet ordre de grandeur est correct compte tenu du type de détecteur et de la bande passante utilisée.

L'expression (16) nous permet aussi de préciser le temps de montée 10% - 90% de l'émission SMM. On obtient alors simplement :

$$T_m = (\alpha)^{-1} \text{Log } 9$$

Ce qui confirme la corrélation entre temps de montée et délai qui sont simplement proportionnels entre eux. Dans la suite nous n'évoquerons donc pas le temps de montée dont l'évolution est identique à celle du délai.

Evolution du délai avec l'accord de la cavité SMM

L'intensité initiale due au rayonnement étant pratiquement indépendante d'une variation de la fréquence d'oscillation, la variation du délai avec la fréquence d'oscillation intervient donc par l'intermédiaire du gain α . Son expression complète est :

$$\alpha = \gamma^2 (\gamma^2 + (\omega - \nu)^2)^{-1} F_1 - \eta$$

Il est ici inutile de développer F_1 dont la dépendance en fréquence est négligeable. L'équation (15) permet aussi d'obtenir :

$$\omega - \nu = (\omega - \Omega) / (1 + \eta / \gamma)$$

On voit que d'une part α est maximal à la résonance ($\omega = \Omega = \nu$) et d'autre part qu'une variation $\Delta\Omega$ de la fréquence d'accord de la cavité entraîne une variation de la fréquence d'émission $\Delta\nu = K\Delta\Omega$. α est alors donné par :

$$\alpha = \gamma^2 (\gamma^2 + (K\Delta\Omega)^2)^{-1} F_1 - \eta$$

Ce qui montre bien que α est une fonction décroissante du désaccord $\Delta\Omega$. Dès lors un changement de la fréquence propre de la cavité a pour effet d'augmenter le délai proportionnellement à $\Delta\Omega^2$. Ceci est en bon accord avec l'allure de la figure II.9 qui représente le délai en fonction de la longueur de la cavité. Les segments d'"erreur" importants à chaque extrémité de cette courbe sont explicités ci-après .

Evolution du délai avec l'intensité initiale I_0

On peut voir dans l'expression du délai que ce dernier dépend de l'inverse de l'intensité de départ I_0 . Cette dépendance a été observée expérimentalement. En effet si I_0 augmente le délai diminue, or à l'arrêt du pompage l'émission SMM décroît en première approximation avec une constante de temps qui est celle de la cavité. Si donc on diminue le temps entre deux crêneaux de pompe, à l'instant où le second crêneau est appliqué, l'intensité dans la cavité est $I'_0 = I_S \exp(-2\eta T)$ ou I_0 thermique, suivant que I'_0 est supérieur ou non à I_0 ; T définit bien entendu le temps entre deux crêneaux successifs. De fait nous avons observé expérimentalement une diminution du délai, lors du raccourcissement de T . Cependant nous n'avons malheureusement pas fait de mesures systématiques de cet effet. Ceci nous aurait permis soit d'obtenir une valeur plus précise des pertes de la cavité qui restent mal déterminées, soit de mettre en évidence l'influence d'autres paramètres tels que la relaxation rotationnelle sur la décroissance de l'émission à l'arrêt du pompage. On peut en effet raisonnablement penser que la relaxation rotationnelle qui agit dans le sens d'une diminution de

l'inversion de population a une influence sur la décroissance de l'émission à l'arrêt du pompage. Toutefois il faudrait alors aussi tenir compte de la réabsorption possible du champ SMM par les molécules. Le problème n'est donc pas simple a priori et comme nous ne disposons pas de résultats expérimentaux nous n'avons pas envisagé cette voie d'étude.

Il est maintenant intéressant d'expliciter la cause des fluctuations importantes du délai lorsque la fréquence de résonance de la cavité s'écarte notablement de la fréquence propre de la transition SMM. Nous avons toujours la relation $2 \propto T_D = \text{Log}(I_1/I_0)$, or ainsi que nous venons de le montrer, pour une fréquence donnée de la cavité α est une constante, I_1 intensité minimale détectée est aussi une constante. Dès lors une fluctuation du délai ne peut provenir que d'une variation de l'intensité de départ I_0 .

Cette variation peut s'expliquer de la façon suivante. Pour le calcul de I_0 provenant du corps noir, nous avons pris pour l'émittance de ce dernier une valeur qui est en fait une valeur macroscopique ; c'est à dire une moyenne temporelle de l'émittance proportionnelle au nombre moyen de photons émis. Or ces photons émis obéissent à la statistique de Bose-Einstein et la probabilité d'obtenir n photons est donnée par [23]

$$P_n = \exp(-nh\nu/kT) [1 - \exp(-h\nu/kT)]$$

tandis que le nombre moyen de photons répartis sur tous les modes de la cavité est donné par $\langle n \rangle = \sum_n n p_n$

Une fluctuation du nombre de photons est alors responsable d'une fluctuation de l'intensité initiale I_0 . On peut alors remarquer que l'effet induit sur T_D est d'autant plus important que le gain α est plus faible. Ceci explique que ces fluctuations ne soient perçues que lorsque l'écart entre les fréquences de la raie et de la cavité sont éloignées. Dans ce cas, en effet le gain est faible et la variation de T_D est alors grande. Notons que ces fluctuations du délai ont aussi été observées dans un autre cas où le gain est faible : lorsque la puissance de pompe est voisine du seuil.

On pourrait alors penser vérifier la loi statistique de distribution des photons en mesurant les variations du délai. Toutefois, les résultats expérimentaux dont nous disposons ici ne sont pas suffisamment précis et nombreux pour effectuer cette vérification que nous n'avons donc pas faite.

Remarquons en outre, que la conservation de la forme du signal même lorsque les fluctuations sont importantes, provient simplement de ce que d'une part l'intensité en régime stationnaire et d'autre part le temps de montée sont indépendants de I_0 .

Evolution du délai avec la puissance de pompe

Le délai varie avec la puissance de pompe par suite de la dépendance du gain global α avec ce paramètre. L'expression de α à la résonance (18) montre que le gain varie avec la puissance de pompe par l'intermédiaire de l'inversion de population. Ceci est en tout point conforme à l'analyse que nous avons faite à partir de la figure II.8. Nous n'explicitons pas plus avant la dépendance du délai avec la puissance de pompe.

Evolution du délai avec la pression du milieu amplificateur

En ce qui concerne la variation du délai avec la pression, l'analyse est rendue compliquée par le fait que le gain α est proportionnel à N/γ où N et γ dépendent de la pression. γ étant proportionnel à la pression, l'allure de la figure II.7 suggère que l'inversion de population N évolue de la façon suivante avec la pression : à pression croissante, elle commence par augmenter, atteint un maximum et ensuite soit diminue soit reste constante. Ceci est confirmé par la figure II.3 puisque l'amplitude de l'émission dépend de l'inversion réalisée.

Pour calculer le gain α et l'intensité I_S nous avons utilisé :

$$N = f_3 N_0 \frac{W}{W+\gamma} = \frac{f_3 N_0 2\pi F(\omega) |x|^2}{2\pi F(\omega) |x|^2 + (\gamma^2 + 4|x|^2)^{1/2}}$$

Dans cette expression seuls N_0 et γ dépendent de la pression à laquelle ils sont proportionnels et à pression croissante N croît et atteint asymptotiquement une valeur limite :

$$N = f_3 N_0 2\pi F(\omega) |x|^2 \Gamma^{-1}$$

où l'on a posé $N_0 = N_0 \times \text{pression}$ et $\gamma = \Gamma \times \text{pression}$.

Il n'est pas possible cependant de mettre α sous la forme donnée expérimentalement à partir du délai (fig.II.7) $\alpha = K(p_0 - p)$, où K est une constante, p la pression et p_0 la valeur de la pression au seuil d'oscillation. Toutefois si on pose égale à zéro l'expression de α donnée précédemment, il est possible de trouver la valeur de la pression au seuil d'oscillation. En prenant les mêmes paramètres que ceux utilisés pour le calcul de I_S , on obtient pour une puissance de pompe de 0.7 Watt une valeur $p_0 = 31$ mTorr. Ceci concorde bien avec la valeur trouvée expérimentalement à partir de la figure II.7 (32 mTorr).

II.3 CONCLUSION

Nous avons pu montrer au cours de ce chapitre qu'une théorie semi-classique du laser est bien adaptée à la description de l'émission du laser SMM optiquement pompé. Cette adaptation s'est révélée particulièrement bonne dans des limites où la puissance de pompe est inférieure au Watt tandis que la pression du milieu amplificateur reste supérieure à 10 mTorr, tout au moins pour les molécules étudiées (HCOOH , D_2CO).

Nous avons pu ainsi mettre en évidence l'influence du gain global sur le temps de montée de l'émission ainsi que sur le délai entre l'application du pompage et la détection du rayonnement SMM. De la même façon,

nous avons pu calculer l'intensité de l'émission SMM et montrer que dans une gamme de temps de l'ordre d'une dizaine de microsecondes après le début de l'émission, le rendement du laser est élevé et atteint quasiment la valeur maximale théorique. D'autre part nous avons aussi pu montrer que le démarrage de l'émission SMM dans notre cavité est assuré par le rayonnement thermique.

Toutefois la théorie développée ne s'adapte pas à la description de l'émission lorsque la pression est inférieure à 10 mTorr. Dans cette gamme de pression apparaissent en effet divers phénomènes dont une suroscillation au démarrage de l'émission. La théorie telle que nous l'avons décrite, n'est pas apte à expliquer cette suroscillation. A priori, on peut penser que ce phénomène est dû à un effet de population car si l'émission débute un certain temps après l'application du pompage, on peut supposer que dans certaines conditions une accumulation d'inversion se produit. Celle-ci pouvant se décharger rapidement en émettant, ceci fournit une explication possible de la suroscillation observée. Remarquons alors que les diverses formules que nous avons établies, l'ont été pour des variations du champ émis lentes par rapport aux temps de relaxation des molécules actives. Elles ne sont donc plus applicables dans le domaine des basses pressions.

Nous avons aussi observé pour des pressions inférieures à 3 mTorr des oscillations dont la forme suggère soit un effet de battement de modes (figure II.13) soit des oscillations de relaxation (figure II.14). La forme et la fréquence de ces oscillations varient avec de nombreux paramètres : fréquence d'accord de la cavité, puissance et fréquence du pompage ainsi que pression du milieu amplificateur. Toutefois notre montage expérimental n'était pas assez perfectionné pour permettre une analyse fine de ces phénomènes ainsi qu'une mise en évidence claire des paramètres importants.

Un autre phénomène a aussi été observé dont il est intéressant de faire mention. Dans certaines conditions, une suroscillation apparaît à la

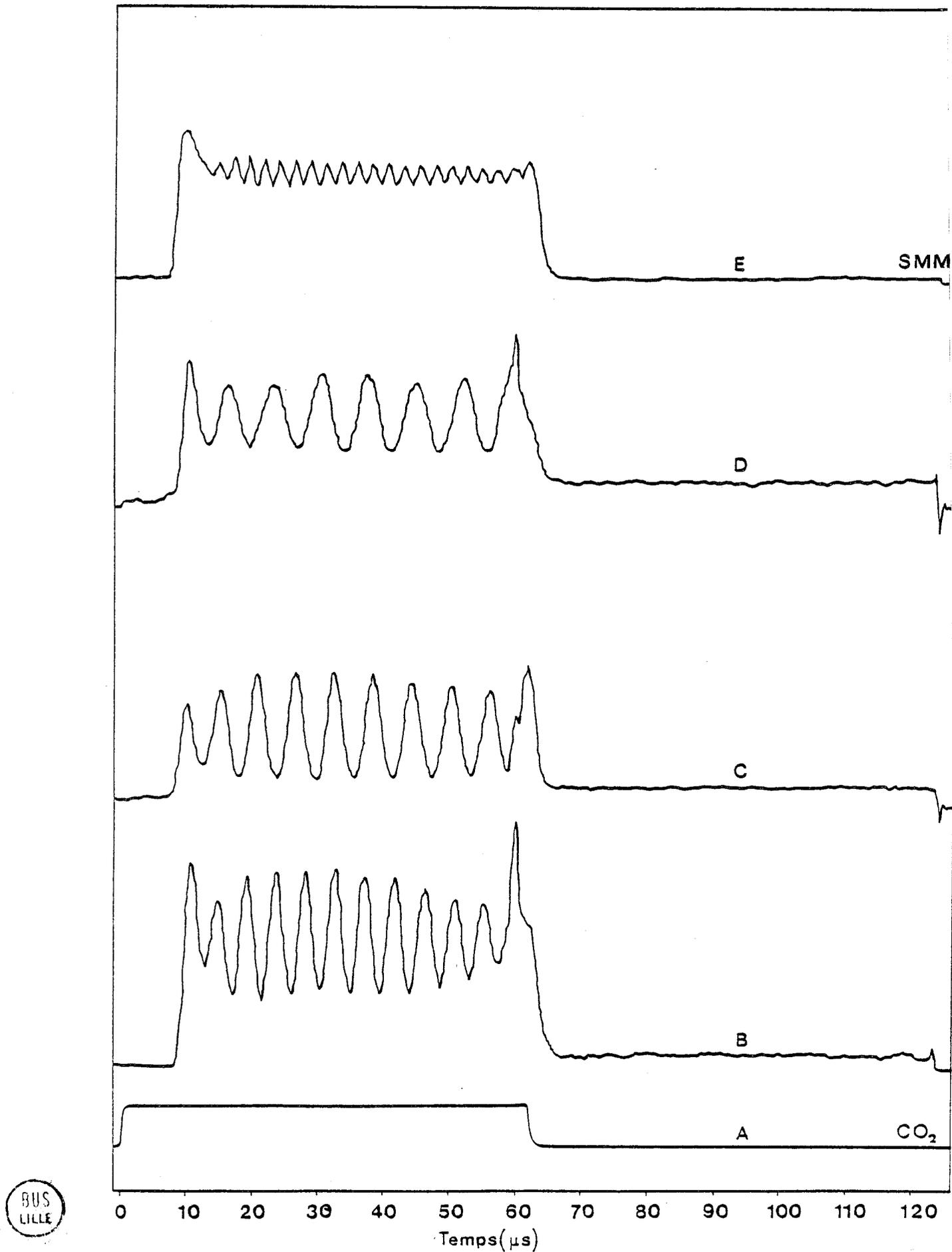


Figure II.13 : Exemples d'oscillations non amorties observées sur l'émission à 742 μm de HCOOH (9R40), puissance IR $\approx 0.8\text{W}$, pression : 3 mTorr. Allure de l'émission pour différentes longueurs de la cavité SMM.

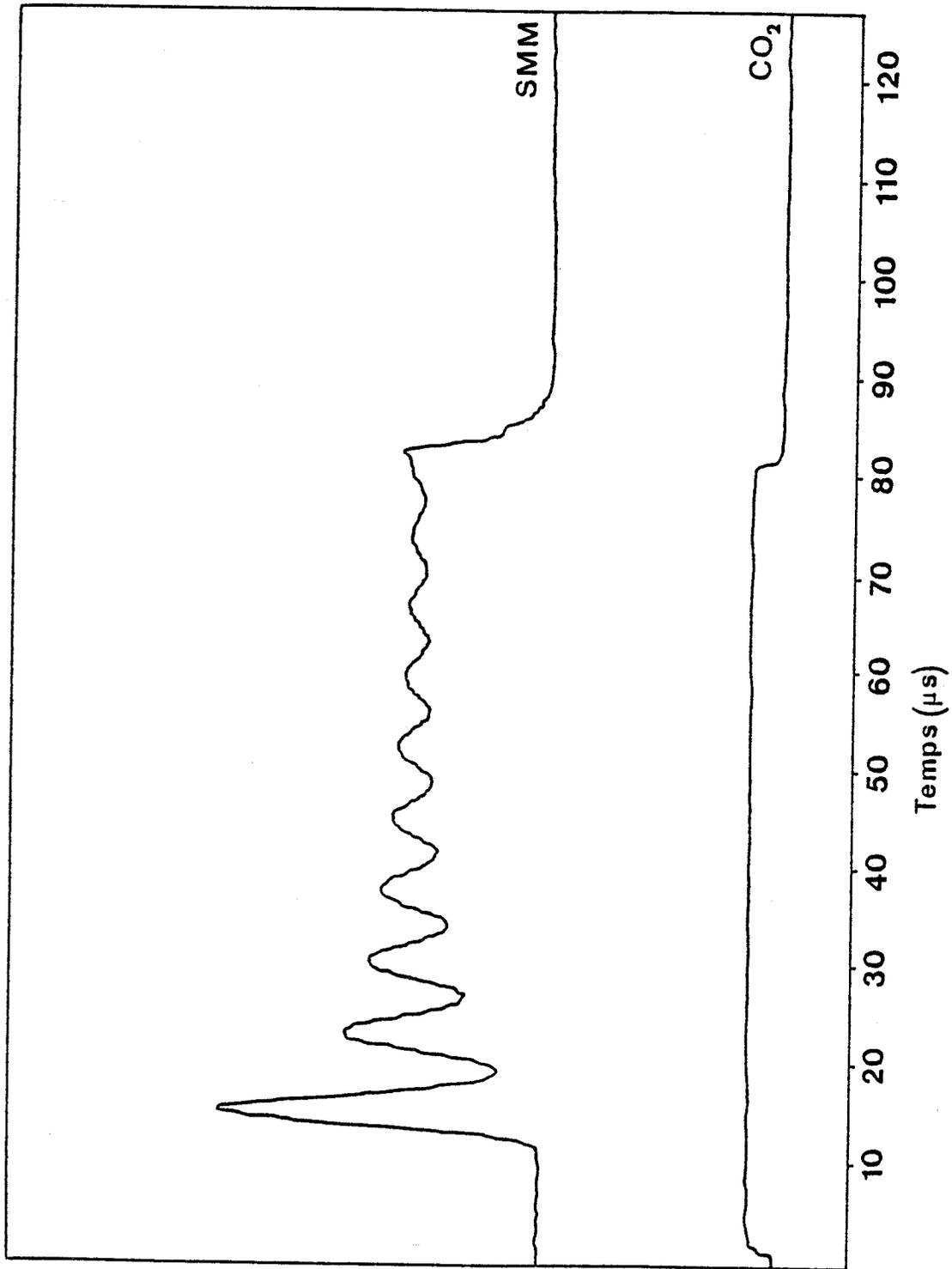


Figure II.14 : Exemple d'oscillations amorties observées après commutation du rayonnement de pompe. Emission à $742 \mu\text{m}$ de HCOOH (9R40), puissance de pompe ~ 0.8 Watt, pression 2.5 Mtorr, cavité accordée.

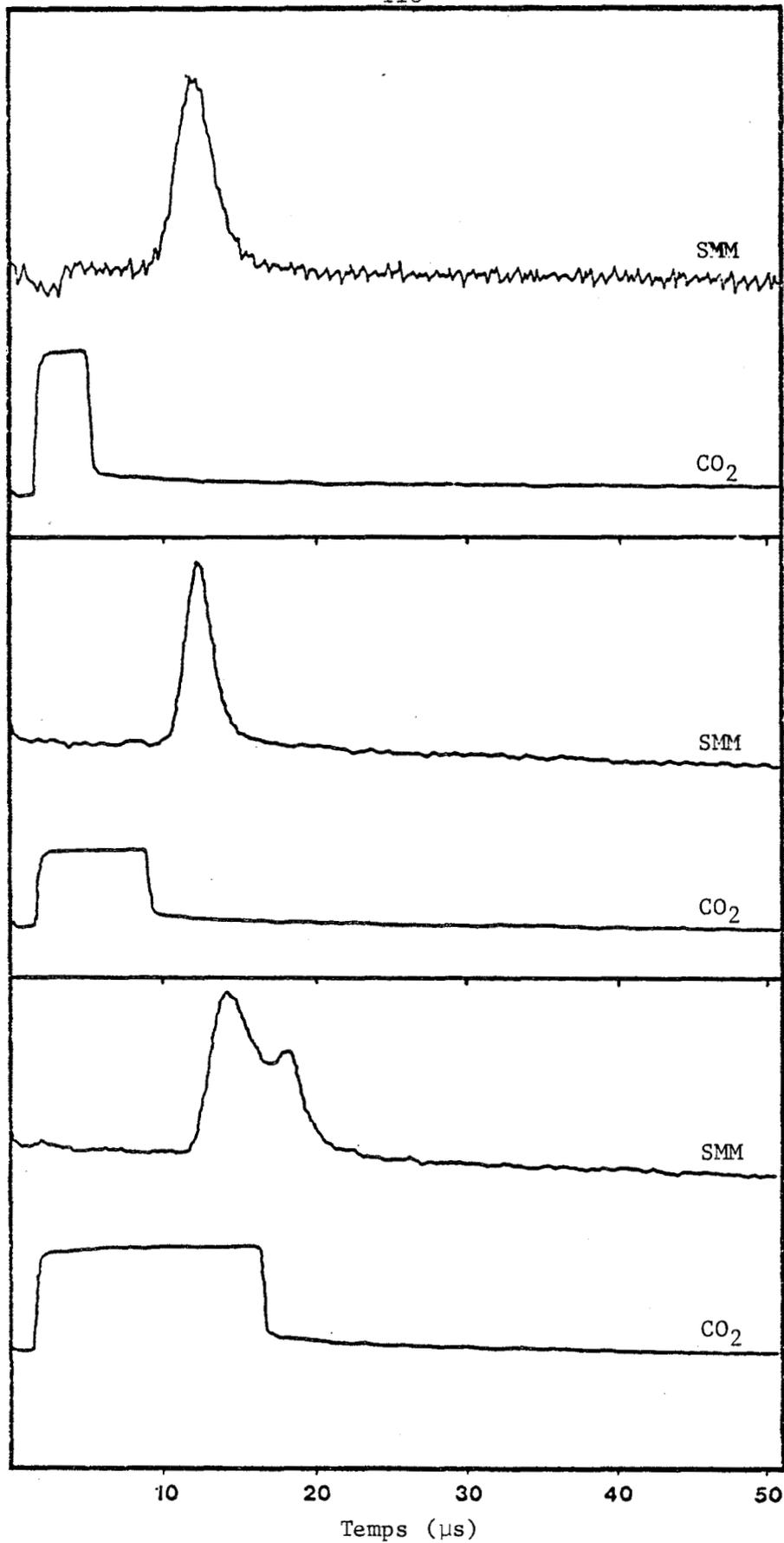


Figure II.15 : Exemple d'effet cumulé des transitoires associés à l'établissement et à l'arrêt du rayonnement de pompe. Emission à 742 μm de HCOOH (9R40) puissance de pompe ~ 1 Watt, pression 2 mTorr. La durée de l'impulsion IR modifie la forme et l'amplitude des signaux observés.

fin de l'émission SMM lors de l'arrêt du pompage. Cet effet est représenté sur la figure II.15. On peut remarquer que dans des conditions extrêmes, l'émission SMM apparaît après la fin du pompage.

Nous avons donc présenté ici une première contribution à l'étude des phénomènes transitoires observés à l'établissement de l'émission d'un laser SMM. A côté de la montée aperiodique de la puissance et du délai, bien décrits par une théorie semi-classique, notre travail a permis de mettre en évidence toute une classe de phénomènes dont l'étude détaillée est actuellement en cours.



CONCLUSION

Nous avons montré au cours de ce travail que l'établissement du régime d'émission d'un laser SMM optiquement pompé a lieu en deux temps : un premier temps qui résulte de l'équilibrage rapide (quelques dizaines de microsecondes) du champ émis avec l'inversion de population (chapitre II) et un second temps qui provient de l'équilibrage de l'inversion avec les populations des divers états ro-vibrationnels (chapitre I).

Pour chacun des régimes nous avons pu interpréter au moins qualitativement les résultats obtenus. Cependant, l'accord quantitatif n'a pu être obtenu que grossièrement en ce qui concerne l'engorgement vibrationnel et une explication complète des phénomènes oscillatoires reste à fournir.

Dès lors il serait intéressant d'optimiser et l'expérience et la théorie afin d'obtenir un accord quantitatif. Si le comportement à l'échelle de la milliseconde est lié aux échanges vibrationnels de la molécule, à l'échelle de la microseconde il est plutôt régi par les paramètres de relaxation rotationnelle. Les informations sur ces deux sujets sont complémentaires pour la compréhension des mécanismes d'échange d'énergie au cours des collisions et nécessaires à l'interprétation de nos résultats. Il est toutefois raisonnable d'envisager l'utilisation de nos résultats pour la détermination de l'efficacité relative de différents gaz tampons en ce qui concerne la relaxation vibrationnelle.

Cependant, l'optimisation des résultats du chapitre I semble difficile ; en effet, la molécule étudiée (CH_3F) présente une des configurations des niveaux d'énergie vibrationnels les mieux adaptées. On ne peut trouver de molécules plus simples absorbant le rayonnement IR du laser CO_2 et l'optimisation des résultats expérimentaux ainsi que théorique est alors compromise.

Les résultats donnés au chapitre II nous livrent une quantité directement mesurable dans le cas du régime apériodique : le gain. Comme nous l'avons montré sa valeur peut être déterminée directement à partir de la mesure du temps de montée. Le gain est une quantité qu'il est intéressant de connaître, et la facilité avec laquelle il est déterminé dans ce cas permet d'envisager des mesures précises pouvant servir à des comparaisons expérience-théorie, notamment en modélisation des laser SMM et pour des expériences de résonances multiples. L'influence des divers paramètres apparaît ainsi immédiatement.

Notons aussi que la mesure du temps de montée, associée à celle du délai permet une détermination quasi-immédiate de l'intensité de départ ; et comme nous l'avons vu, des champs très faibles peuvent être mis en évidence et mesurés de cette manière.

Pour ce qui est des oscillations, il semble intéressant de reprendre la théorie développée au chapitre II mais en ne négligeant pas cette fois-ci la variation du champ et de l'inversion pendant un temps $1/\gamma$. D'autre part, remarquons qu'il sera peut être nécessaire de considérer, comme dans les lasers à rubis, un système à 3 niveaux et non plus à deux, pour expliquer la suroscillation à l'arrêt du pompage.

Les instabilités de délai observées peuvent permettre une vérification relativement simple de la loi statistique de distribution des photons. Ces résultats devront être comparés aux prédictions d'une théorie purement quantique du démarrage de l'oscillation, seule apte à englober tous les aspects possibles du comportement de l'émission.

A ce stade, il paraît aussi intéressant de considérer le laser sous un aspect thermodynamique. En effet, un laser au seuil d'oscillation se comporte de façon analogue à un système présentant une transition de phase du second ordre. On peut alors montrer qu'il y a une augmentation critique des instabilités au voisinage de la transition de phase [29]. Ces effets

sont rapportés qualitativement dans notre travail où l'on a mis en évidence des fluctuations "géantes" du délai alors que l'amplitude stationnaire n'était pas affectée.

La confrontation des points de vue quantique et thermodynamique devrait s'avérer fructueuse pour l'interprétation de ce type de comportement. D'autre part, la montée en oscillation d'un laser SMM optiquement pompé s'inscrit dans le cadre plus général du comportement collectif de systèmes thermodynamiques ouverts (Synergétique) [30].

REFERENCES

- [1] R.J. TEMKIN et D.R. COHN
 Opt.Comm. 16, 213 (1976).
 T.Y. CHANG et J.D. Mc GEE
 IEEE J.Quant.Elect. QE12, 62 (1976).
- [2] H.R. FETTERMAN, H.R. SCHLOSSBERG et C.D. PARKER
 Appl.Phys.Lett. 23, 684 (1973).
 S.M. FREUND, G. DUXBURY, M. RÖMHELD, J.T. TIEDJE et T. OKA
 J.Mol.Spectro. 52, 38 (1974).
 F. SHIMIZU
 J.Phys.Soc.Jap. 38, 1106 (1975).
- [3] N. IOLI, G. MORRUZI, F. STRUMIA
 Lett.Nuovo.Cimento 28, 257 (1980).
- [4] D.J.E. KNIGHT
 NPL Report n°Qu45, Fév.1981.
- [5] D. DANGOISSE, Thèse d'Etat, Lille (1980).
- [6] A. JAVAN
 Phys.Rev. 107, 1579 (1957).
 J.O. HENNINGSEN et H.G. JENSEN
 IEEE J.Quant.Elect. QE11 n°6, 242 (1975).
 C.O. WEISS
 IEEE J.Quant.Elect. QE12 n°10, 520 (1976).
 J. HEPPNER et C.O. WEISS
 Opt.Comm. 21, 324 (1977).
 R.J. TEMKIN
 IEEE J.Quant.Elect. QE13 n°6, 450 (1977).

R.L. PANOCK, R.J. TEMKIN

IEEE J.Quant.Elect. QE13 n°6, 425 (1977).

D. SELIGSON, M. DUCLOY, J.R.R. LEITE, A. SANCHEZ, M.S. FELD

IEEE J.Quant.Elect. QE13, n°6, 468 (1977).

D.T.HODGES , J.R. TUCKER

Appl.Phys.Lett. 27, 667 (1975).

- [7] J.R. TUCKER
Conf.Digest International Conf. on Submm Waves and their applications,
Atlanta, MTT 17 (1974).
- [8] W.W. DULEY CO₂ Lasers. Effects and Applications.
Academic Press, New-York, San Francisco, London (1976).
- [9] J. HOURIEZ
Thèse de 3^è Cycle, Lille 1972.
- [10] J.P. SPLINGARD
Thèse de 3^è Cycle, Lille 1977.
- [11] T.Y. CHANG
IEEE Trans. on Micro. and Tech. MTT 22 n°12, 983 (1974).
- [12] T. LI
B.S.T.J. 44, 917 (1965).
- [13] J. WASCAT
Rapport de DEA, Lille 1979.
- [14] M. LEFEBVRE
Rapport de DEA, Lille 1980.

- [15] P. MINGUZZI, F. STRUMIA et P. VIOLINO
Nuovo Cimento 46B, 145 (1966).
N. BEVERINI, P. MINGUZZI et F. STRUMIA
Phys.Rev. A4, 550 (1971).
- [16] P.R. BERMAN, J.M. LEVY et R.G. BREWER
Phys.Rev. A11, 1668 (1975).
- [17] L.A. LUGIATO, P. MANDEL, S.T. DEMBINSKI et A. KOSSAKOWSKI
Phys.Rev. A18, 238 (1978).
- [18] E. WEITZ et G.W. FLYNN
J.Chem.Phys. 58, 2781 (1973).
- [19] T.A. DE TEMPLE et E.J. DANIELEWICZ
IEEE J. Quant.Elect. QE12, 40 (1976).
- [20] T.Y. CHANG et C. LIN
J.Opt.Soc.Am. 66, 362 (1976).
- [21] W.E. LAMB Jr
Phys.Rev. 134A, 1429 (1964).
- [22] W.R. KLEIN et B.D. COOK
IEEE Trans.Sonics and Ultrasonics SU14, 123 (1967).
- [23] M.O. SCULLY et W.E. LAMB Jr
Phys.Rev. 159, 208 (1967).
- [24] F.T. ARECCHI et V. DEGIORGIO
Phys.Rev. A3, 1108 (1971).
G.K. BORN
Appl.Phys.Lett. 12, n°2, 46 (1968).

- [25] A.G. FOX et T. LI
B.S.T.J. 40, 61 (1961).
- [26] B. MACKE
Cours de DEA, Lille (1979).
- [27] D. VERON
Communication Privée.
- [28] S.F. DYUBKO, V.A. SVICH et L.D. FESENKO
Sov.J.Quant.Electron. 3, 446 (1974).
- [29] J.F. SCOTT, M. SARGENT III, C.D. CANTRELL
Opt.Comm. 15, 13 (1975).
M. SUZUKI
Progress Theoret. Phys. 64, 402 (1978).
- [30] H. HAKEN Synergetics
Springer, Berlin (1978).
- [31] C.L. TANG
J.Appl.Phys. 34, 2935 (1963).
- [32] D. DANGOISSE, P. GLORIEUX, J. WASCAT
Int.J.Infrared.MM.Waves. 2, 215 (1981).

