

N° d'ordre : 1029

50376
1983
217

50376
1983
217

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE 3^{ème} CYCLE

par

Michel LEFEBVRE

**EFFETS NON LINEAIRES DANS UN
LASER SUBMILLIMETRIQUE**

DISPERSION ET PHENOMENES TRANSITOIRES



Soutenu le 3 Février 1983 devant la Commission d'Examen

Membres du Jury :	M. WERTHEIMER	Président
	M. GLORIEUX	Rapporteur
	M. ADDE	Examineur
	M. DANGOISSE	Examineur
	M. MACKÉ	Examineur

U.E.R. de Physique Fondamentale

Ce travail a été effectué à l'U.E.R. de Physique Fondamentale de l'Université des Sciences et Techniques de Lille, dans le laboratoire de Spectroscopie Hertzienne, laboratoire associé au C.N.R.S., 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 Didier DANGOISSE et Pierre GLORIEUX, pour m'avoir guidé. Ils ont su par leur collaboration amicale et leur sens critique m'aider à mener à bien ce travail.

Je remercie très vivement Monsieur ADDE, Maître de recherche au C.N.R.S. pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de juger ce travail.

Je remercie également Bruno MACKÉ, d'avoir accepté de se joindre au jury pour examiner ce travail.

Je suis très reconnaissant envers l'ensemble des techniciens du laboratoire et de l'U.E.R. pour leur contribution à la réalisation de ce travail. Je remercie en particulier Monsieur ROSSEELS pour les parties électronique et hyperfréquence.

Madame BOERÉZ, avec beaucoup de compétence, a apporté le plus grand soin à la dactylographie de ce mémoire, Monsieur RAFFAUD s'est chargé de l'illustrer et le personnel du service de photocopie de l'U.E.R. en a assuré la reproduction. C'est avec plaisir que je leur adresse un amical remerciement.

SOMMAIRE



<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I : DISPOSITIF EXPERIMENTAL</u>	
I-1 : Principe de fonctionnement du laser SMM optiquement pompé	5
I-2 : Le laser de pompe	8
I-3 : La cavité Pérot Fabry	10
I-4 : La cavité guide d'onde	11
I-4-a : Caractéristiques de la cavité	13
I-4-b : Performances	16
I-5 : Conclusion	17
<u>CHAPITRE II : EFFETS DE DISPERSION DANS LES EXPÉRIENCES</u>	
<u>DE DOUBLE RÉSONANCE</u>	
II-1 : Le principe des expériences	20
II-2 : Le dispositif expérimental	21
II-2-a : La source microonde et la détection de la puissance SMM émise	21
II-2-b : La détection superhétérodyne	25
II-3 : Influence de l'irradiation MW sur la puissance émise par le laser : effets de population	27
II-3-a : Résultats expérimentaux	27
II-3-b : Discussion	29
II-4 : Effets de dispersion	32
II-4-a : Présentation des effets de dispersion	32
II-4-b : Effets de dispersion observés sur la puissance de sortie	34
II-4-c : Effets de dispersion observés sur la fréquence du laser	37
II-4-d : Comparaison avec les résultats théoriques	37
II-5 : Conclusion	41

CHAPITRE III : COMPORTEMENT TRANSITOIRE DU LASER

<u>PREAMBULE</u>	43
III-1 : Montage expérimental	46
III-1-a : Modulation de la puissance de pompe	46
III-1-b : Montage optique et traitement du signal SMM ...	47
III-2 : Résultats acquis au début de cette étude	51
III-3 : Modèle à deux niveaux d'énergie	58
III-3-a : Etablissement du modèle	59
III-3-b : Equations d'auto-cohérence	64
III-3-c : Etablissement des équations de mouvement de la polarisation locale	68
III-3-d : Passage à des quantités sans dimension	72
III-3-e : Dépendance du gain en fonction de la puissance IR de pompe	74
III-3-f : Elimination adiabatique des variables	78
III-3-g : Passage à des grandeurs globales	82
III-3-h : Résolution numérique	87
III-4 : Analyse de stabilité linéaire ; comportement oscillatoire	90
III-4-a : Analyse de stabilité linéaire	92
III-4-b : Etude expérimentale	97
III-4-c : Interprétation	100
III-5 : Effet transitoire observé à l'arrêt de la puissance de pompe	106
III-5-a : Mise en évidence expérimentale	106
III-5-b : Interprétation	106
III-6 : Ouverture vers de nouvelles études	114
III-6-a : Influence sur le délai	114
III-6-b : Influence sur la statistique	117
III-7 : Conclusion	121
<u>CONCLUSION</u>	123
<u>ANNEXE</u> : Critère de ROUTH-HURWITZ.....	125
<u>REFERENCES</u>	127

INTRODUCTION

Les lasers submillimétriques (SMM) constituent un ensemble de sources de rayonnement cohérent dans le domaine compris entre 50 μm et 1 mm de longueur d'onde. Ce type de source a été particulièrement développé depuis l'apparition des premiers lasers SMM optiquement pompés (1970) qui sont à l'origine d'un grand nombre d'émissions dont la puissance varie du micro-watt à quelques centaines de milli-watts en fonctionnement continu et peut atteindre le méga-watt en régime pulsé.

Les lasers SMM optiquement pompés ont été considérés sous deux aspects différents : de nombreux expérimentateurs ont cherché à augmenter le nombre de fréquences d'émission en excitant de nouvelles molécules ; par ailleurs plusieurs groupes se sont intéressés à la physique du laser SMM en essayant d'expliquer les différents mécanismes régissant l'émission ou en explorant par exemple ses possibilités de modulation (amplitude et fréquence). Notre travail concerne ce deuxième aspect ; nous avons étudié deux types d'effets non linéaires se produisant dans un laser SMM : la dispersion du milieu actif induite par double résonance et le comportement transitoire du laser.

Les effets de dispersion s'inscrivent dans le prolongement des études de double résonance où la puissance de sortie du laser est modulée par l'absorption d'un rayonnement additionnel introduit à l'intérieur de la cavité. La complexité des formes observées nous a conduit à considérer l'influence des effets d'indice. Nous avons alors entrepris de mettre directement en évidence la dispersion dans les expériences de double résonance. Ce phénomène présente une certaine analogie avec les effets de dispersion observés en double résonance microonde-microonde⁽¹⁾ ou infrarouge-microonde⁽²⁾ cependant, dans nos expériences c'est sur le milieu actif d'un laser que le rayonnement additionnel interagit, ceci entraîne non seulement des modifications de la puissance mais aussi des variations de la fréquence du laser.

L'analyse du comportement transitoire est réalisée en commutant par tout ou rien le rayonnement de pompe qui crée l'inversion de population responsable de l'émission laser. On observe alors la façon dont s'établit ou s'arrête cette émission. L'intérêt de ce type d'études est triple.

Premièrement les effets transitoires sont ici qualitativement différents des transitoires cohérents tels que la nutation optique, la précession optique ou les échos de photons observés en modulant rapidement l'interaction d'un ensemble d'atomes ou de molécules avec une source continue^(3,4). Dans le laser SMM, quand le milieu actif est faiblement saturé, l'émission s'établit de façon apériodique tandis que dans les situations de plus fort gain, la puissance de sortie présente une suroscillation avant d'atteindre un état stationnaire. A l'arrêt du champ et pour des conditions de forte saturation, on observe un effet analogue dû à des phénomènes transitoires à deux photons.

Deuxièmement, le laser est un exemple de système quantique qui présente un comportement collectif comme l'est la superradiance⁽⁵⁾ mais, dans notre situation, le système est placé à l'intérieur d'une cavité et le gain du milieu, relativement faible, ne permet pas d'observer les effets qui apparaissent dans une échelle de temps inférieure au temps de relaxation rotationnelle. Par ailleurs, l'évolution du laser, système partant d'un état instable vers un état final stable, peut être considéré dans le cadre plus général des systèmes subissant une transition de phase (synergétique). Les oscillations non amorties observées sur la puissance de sortie du laser, même excité de façon continu, montrent l'existence de cycles limites stables comme il en existe de nombreux exemples dans d'autres systèmes synergétiques.

Enfin le comportement transitoire du laser SMM peut être décrit dans la plupart des cas à partir de modèles théoriques simples à deux niveaux d'énergie, ce qui permet une comparaison théorie expérience assez aisée.

Avant de présenter les résultats correspondants, nous rappelons dans un premier chapitre les caractéristiques essentielles du dispositif expérimental utilisé. Le second chapitre est consacré à la dispersion et à l'interprétation des signaux dus à la dispersion en double résonance. Nous donnons, dans le troisième chapitre, une présentation synthétique des effets transitoires dans le laser SMM. Le modèle permet de réinterpréter le comportement du laser en régime de faible saturation mais surtout d'expliquer l'ensemble des signaux observés tant à la montée qu'à l'arrêt et quel que soit le régime de saturation.

CHAPITRE I

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Ce premier chapitre porte essentiellement sur la description du dispositif expérimental de base constitué de deux cavités SMM et d'un laser de pompe pouvant fonctionner avec du gaz carbonique (CO_2) ou du protoxyde d'azote (N_2O) ; ces différents éléments ont été réalisés au laboratoire. Avant de préciser les caractéristiques de la source SMM, nous rappelons brièvement dans une première partie le principe de fonctionnement du laser SMM optiquement pompé. Les mécanismes intervenant au cours du pompage optique sont décrits simplement, par un bilan des transferts de population établi suivant de modèle de J.R. TUCKER (6). (cf Fig. I.1).

I - 1) PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU LASER SMM OPTIQUEMENT POMPE

Considérons deux niveaux de vibration $|v\rangle$ et $|v'\rangle$ d'un gaz de molécules polaires où $|v\rangle$ désigne l'état de plus basse énergie, généralement l'état fondamental de vibration ; les différents niveaux de rotation sont notés $|v,1\rangle$ et $|v',j\rangle$. La différence d'énergie entre les niveaux $|v,1\rangle$ et $|v',2\rangle$ considérés ici, est de l'ordre de 1000 cm^{-1} . A l'équilibre thermodynamique et en absence de champ, les niveaux moléculaires sont occupés avec des probabilités données par la loi de Boltzmann et seul le niveau $|v,1\rangle$ a une population notable, la probabilité relative d'occupation des niveaux $|v',j\rangle$ étant plus faible (de l'ordre de 10^{-2}).

Le principe de fonctionnement d'un laser est généralement basé sur la possibilité de maintenir une inversion de population entre deux niveaux d'énergie. Dans le cas du laser SMM optiquement pompé, cette inversion est réalisée entre les niveaux rotationnels $|v',2\rangle$ et $|v',3\rangle$ de l'état excité $|v'\rangle$ par un rayonnement infrarouge de pompe dont la fréquence est voisine de celle de la transition de vibration $|v,1\rangle \rightarrow |v',2\rangle$.

Lorsque ce gaz en état d'inversion de population est placé à l'intérieur d'un résonateur, une oscillation à la fréquence de la transition $|v',2\rangle \rightarrow |v',3\rangle$ supposée permise, peut alors prendre naissance si le gain du milieu amplificateur compense les pertes du résonateur.

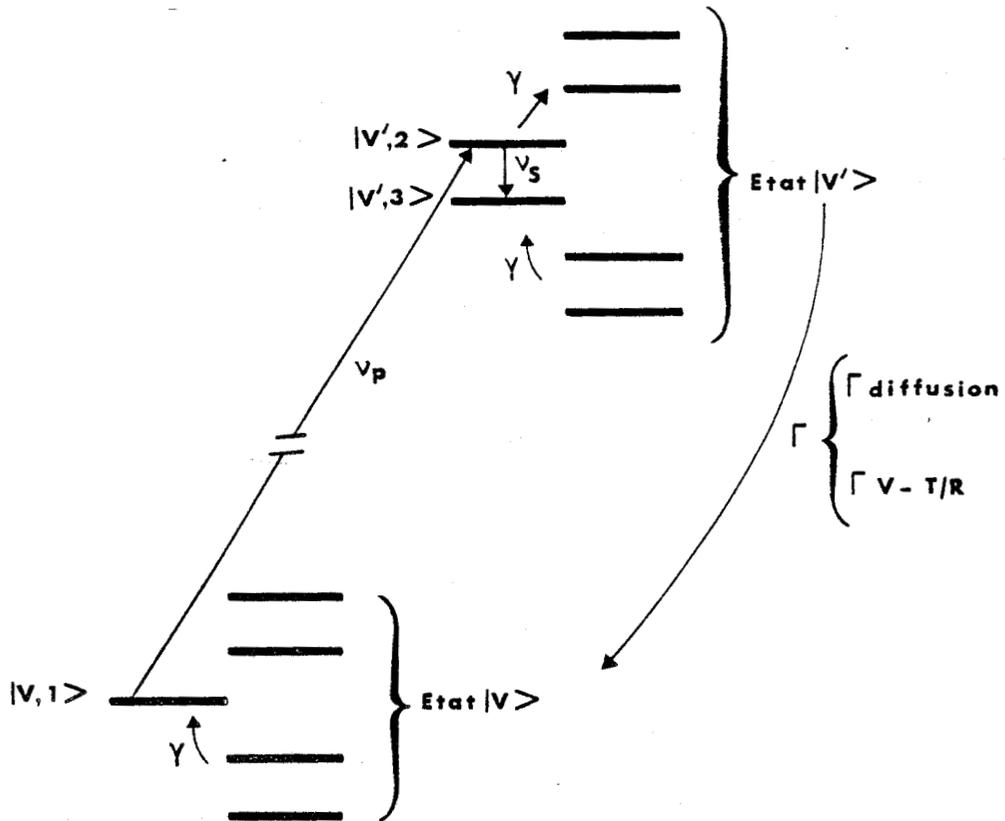


Figure I-1 : Modèle de J.R. TUCKER⁽⁶⁾ utilisé pour décrire le fonctionnement du laser SMM optiquement pompé.

Afin de décrire le cycle complet de pompage, introduisons les taux de relaxation rotationnelle (γ) et vibrationnelle (Γ) ; nous négligeons la désexcitation par émission spontanée puisqu'aux fréquences SMM, la durée de vie moyenne des états rotationnels est de l'ordre de la seconde.

Désexcitation rotationnelle

Lors des collisions intermoléculaires, le processus de désexcitation le plus efficace pour un gaz polaire est la relaxation rotationnelle qui se traduit par des changements d'état de rotation à l'intérieur d'un même état de vibration. Le taux des collisions avec changement d'état rotationnel peut être représenté par :

$$\gamma = \frac{1}{\tau} = 2 \pi \Delta \nu$$

où τ est le temps moyen entre deux chocs successifs et $\Delta \nu$ la demi-largeur collisionnelle à mi-hauteur (typiquement $\gamma \sim 10^8 \text{ s}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$).

Désexcitation vibrationnelle

La désexcitation vibrationnelle intervient dans deux processus : soit au cours des chocs avec les parois de l'enceinte suite à l'effet de diffusion des molécules vers l'extérieur du milieu actif ou soit par collisions intermoléculaires et transfert de l'énergie vibrationnelle en énergie de translation et de rotation. L'effet de diffusion est caractérisé par Γ_{diff} et l'effet des collisions intermoléculaires par $\Gamma_{\text{V-T/R}}$; ces processus coopèrent à la désexcitation vibrationnelle que l'on peut caractériser par un taux Γ :

$$\Gamma \begin{cases} \Gamma_{\text{diff}} \propto \frac{1}{Pa^2} \\ \Gamma_{\text{V-T/R}} \propto P \end{cases}$$

où P est la pression du gaz et a le rayon de diffusion caractérisant l'extension radiale du milieu actif (typiquement $\Gamma_{\text{diff}} \sim 10^3 \text{ s}^{-1} \text{ Torr cm}^2$ et $\Gamma_{\text{V-T/R}} \sim 10^3 \text{ s}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$).

Remarquons que la désexcitation vibrationnelle due aux collisions ($\Gamma_{\text{V-T/R}}$) domine à haute pression, lorsque les molécules actives subissent un grand nombre de chocs avant d'atteindre les parois alors que les effets de diffusion (Γ_{diff}) l'emportent à basse pression (milieu dilué).

Compte tenu des ordres de grandeur respectifs de γ et Γ : $\gamma \gg \Gamma$, le cycle de pompage s'établit de la manière suivante : les molécules initialement transférées dans l'état $|v',2\rangle$ par le rayonnement de pompe, donnent naissance à l'émission SMM et subissent un grand nombre de changements d'état rotationnel avant de se désexciter vibrationnellement et de pouvoir être réexcitées par le laser de pompe.

Les effets combinés du faible taux de relaxation vibrationnelle Γ et du taux important de désexcitation rotationnelle γ provoquent une accumulation de population dans l'état de vibration excité $|v'\rangle$ qui est l'une des causes du faible rendement du laser SMM. Cet "engorgement vibrationnel", limité par deux processus différents la densité d'inversion de population des niveaux $|v',2\rangle$ et $|v',3\rangle$ participant à l'émission SMM.

D'une part la relaxation rotationnelle provoque une thermalisation des populations des niveaux de rotation $|v',j\rangle$; ce retour vers l'équilibre de Boltzmann favorise la population du niveau $|v',3\rangle$ dont la probabilité d'occupation est plus grande que celle du niveau $|v',2\rangle$ et tend ainsi à réduire l'inversion de population des niveaux connectés par la transition SMM. D'autre part, l'accumulation de population dans l'état $|v'\rangle$ limite l'efficacité du pompage infrarouge par une diminution de l'inversion de population des niveaux de la transition de pompe : $|v,1\rangle$ et $|v',2\rangle$. Cet effet d'engorgement vibrationnel a été mis en évidence expérimentalement au laboratoire par l'étude du comportement transitoire d'un laser SMM à l'échelle de la milliseconde ($\Gamma^{-1} \sim 1\text{ms}$)^(7,8).

Précisons également que peu de molécules participent au pompage optique car la transition de pompe présente un élargissement Doppler dominant aux pressions typiques de fonctionnement (inférieures à 150 mTorr). Le pompage est donc sélectif en vitesse et l'ordre de grandeur de la largeur relative des classes de vitesse intervenant dans le processus d'émission est donné par le rapport des largeurs homogène et Doppler de la transition infrarouge (10^{-2} à 15 mTorr).

Après ces quelques rappels des mécanismes permettant d'expliquer le fonctionnement du laser SMM optiquement pompé, nous décrirons les caractéristiques de l'installation SMM dont nous disposons et qui se compose d'un laser de pompe et de deux cavités SMM pouvant être utilisées séparément. Les deux cavités utilisées dans ce présent travail, sont de conceptions différentes : l'une est un résonateur ouvert, l'autre est de type guide d'onde. Nous ne donnerons qu'une description succincte du résonateur ouvert, étudié en détail dans un travail antérieur⁽⁹⁾ et apporterons plus d'attention à la cavité guide d'onde qui est de réalisation plus récente⁽¹⁰⁾.

I - 2) LE LASER DE POMPE

Le laser de pompe a une structure classique : il est composé d'une cavité résonnante à l'intérieur de laquelle est placé un tube à décharge.

La cavité d'une longueur de 1,5 m est limitée par un réseau plan Jobin Yvon 150t/mm et par un miroir plan concave semi-réfléchissant en séléniure de zinc (ZnSe) de rayon de courbure 10 m ; la stabilité en longueur est assurée par deux barres d'Invar. Un diaphragme, placé à l'intérieur de la cavité, permet d'atténuer les modes transverses et ainsi de rendre monomode le faisceau de sortie.

Le réseau, utilisé dans l'ordre 1 et dans les conditions de Littrow, assure le fonctionnement monoraie ; il est placé sur une platine goniométrique de grande précision qui permet le choix de la raie d'émission du laser. L'identification des raies s'effectue à l'aide d'un analyseur de spectre commercial "Optical Engineering".

Le rayonnement est extrait, dans l'axe du laser, par le miroir plan concave semi-réfléchissant. Ce miroir est placé dans un support orientable "micro contrôle" et la sélection des modes longitudinaux de la cavité s'effectue au moyen d'une céramique piézoélectrique (Burleigh PZ80).

Ce tube à décharge est refroidi par une circulation d'eau, sa longueur est de 1,3 m et son diamètre intérieur de 12 mm. Il est fermé à chaque extrémité par des lames en ZnSe placées sous incidence de Brewster. Les deux fenêtres sont aisément démontables, ce qui permet de les maintenir dans un bon état de propreté et d'obtenir ainsi le rendement optimal du laser.

La décharge électrique s'effectue au moyen d'électrodes reliées à une alimentation régulée en courant à mieux que 10^{-3} près pouvant débiter 80 mA sous une tension de 15 Kv.

Le laser est utilisé en régime d'écoulement ; la circulation rapide du mélange gazeux composé d'hélium, d'azote et de gaz carbonique ou de protoxyde d'azote est assurée avec une pompe primaire à grand débit. Avec le gaz carbonique, les débits sont typiquement : He 3ℓ/min, N₂ 1,5ℓ/min, CO₂ 1,5ℓ/min, le courant de décharge est de 20mA. Lors de l'utilisation de protoxyde d'azote, les débits sont He 8ℓ/min, N₂ 2,3ℓ/min, N₂O 1,1ℓ/min. Le mélange est complété avec du monoxyde

de carbone ; le débit qui assure la puissance optimale est obtenu lorsque la couleur de la décharge vire au bleu, le courant est alors habituellement de 10 mA.

La puissance de sortie du laser, mesurée à l'aide d'un calorimètre "cohérent radiation mod 201" est de l'ordre de 20 W en fonctionnement monomode, monoraie sur les émissions les plus intenses du gaz carbonique avec un miroir de pouvoir réflecteur 70%. Celui-ci est remplacé par un miroir de même géométrie mais de pouvoir réflecteur 90% afin d'obtenir les raies de gain faible (R0, R2, R46, R48 etc ...) et les émissions du protoxyde d'azote. Pour ce dernier gaz, les raies émises, de P9 à P26 et de R8 à R29 ont une puissance comprise entre 0,4 W et 2 W pour les plus intenses.

I - 3) LA CAVITE PEROT FABRY

Nous rappelons ici les caractéristiques géométriques du résonateur ainsi que ses performances en tant que source SMM.

La cavité se compose d'un miroir sphérique de 14 cm de diamètre et d'un miroir plan de 10 cm de diamètre, ces deux éléments sont en aluminium poli. Le miroir sphérique de 3 m de rayon de courbure est percé en son centre d'un trou de 4 mm de diamètre qui permet l'introduction du rayonnement de pompe parallèlement à l'axe du résonateur ainsi que l'extraction d'une partie de l'énergie SMM présente dans la cavité. Ces deux miroirs, maintenus par un système de cardans, sont distants de 1,3 m. L'ensemble est placé sous vide dans une enceinte en pyrex.

Ces caractéristiques en font un résonateur proche de la configuration semi-confocale ; cette géométrie a été choisie pour éviter qu'une partie importante de la puissance de pompe ne soit réfléchi hors de la cavité ⁽¹¹⁾.

La longueur du résonateur peut être accordée à une fréquence choisie par translation du miroir plan. Le déplacement du miroir, repéré à l'aide d'une vis micrométrique, permet une estimation directe de la longueur d'onde SMM par interférogramme, la précision correspondante est de l'ordre du micromètre.

Les pertes du résonateur dans le domaine SMM ont pour causes : la diffraction, la réflexion sur les miroirs et le couplage du rayonnement vers l'extérieur de la cavité ; l'estimation de ces différentes quantités montre que les pertes par réflexion et par couplage sont de l'ordre de 1%, quant au coefficient de pertes par diffraction, estimé à partir du nombre de Fresnel de la cavité, il est au maximum de 4% pour une longueur d'onde de 2 mm et de 1% pour les longueurs d'onde comprises entre 0,1 et 1 mm.

Le laser SMM réalisé à partir de la cavité Pérot Fabry décrite ci-dessus peut fonctionner sur une large gamme de longueur d'onde comprise entre 50 μm et 2 mm. Le relevé de l'interférogramme de la cavité montre que les modes d'ordre élevé sont peu nombreux et que le fonctionnement est généralement en mode unique pour les différentes résonances de la cavité. Le rayonnement est polarisé linéairement dans une direction fonction de celle du rayonnement de pompe. La puissance émise, observée expérimentalement est très faible, de l'ordre de 1% de la limite théorique ⁽¹²⁾.

$$P_S = \frac{1}{2} \frac{v_S}{v_P} P_P$$

où P_S , v_S (P_P , v_P) désignent respectivement la puissance et la fréquence du rayonnement SMM (du rayonnement de pompe).

I - 4) LA CAVITE GUIDE D'ONDE

De conception différente du résonateur ouvert, la cavité de type guide d'onde comprend deux miroirs placés aux extrémités d'un guide circulaire, diélectrique ou métallique, de rayon a . Afin de préciser les pertes des deux cavités : diélectrique ou métallique, nous rappelons les caractéristiques des modes à plus faibles pertes se propageant dans chaque guide, supposé surdimensionné ($\frac{a}{\lambda} \gg 1$).

Pour un guide métallique de longueur infinie, les modes TE_{01} et TE_{02} ont les plus faibles pertes ⁽¹³⁾; le coefficient d'atténuation par unité de longueur est donné par la relation ^(14, 15) :

$$\alpha_{TE_{nm}} = \left(\frac{\pi \epsilon_0 v}{\sigma a^2} \right)^{1/2} \left[\left(\frac{n}{u'_{nm}} \right)^2 \left(1 - \left(\frac{n}{u'_{nm}} \right)^2 \right)^{-1} + \left(\frac{c u'_{nm}}{2 \pi a v} \right)^2 \right]$$

où : u'_{nm} est le $m^{\text{ième}}$ zéro de J'_n (dérivée de la fonction de Bessel d'ordre n)

ν est la fréquence de la radiation

σ est la conductivité du matériau

a est le rayon du guide

A titre d'exemple : pour un guide en laiton $\lambda = 300 \mu\text{m}$, $a = 11 \text{ mm}$

$$\alpha_{TE_{01}} = 1,45 \times 10^{-4} \text{ dBm}^{-1}$$

$$\alpha_{TE_{02}} = 4,85 \times 10^{-4} \text{ dBm}^{-1}$$

Il faut ajouter à ces pertes résistives, les pertes dues au couplage entre chaque miroir et le guide. Pour la cavité métallique, les modes TE_{01} et TE_{02} , polarisés circulairement (cf Fig. I-2) se couplent mal au mode gaussien TEM_{00} en propagation libre et la disposition qui minimise les pertes est celle où les miroirs sont placés à l'intérieur du guide⁽¹⁶⁾.

Dans le cas d'un guide diélectrique de longueur infinie, les modes EH_{11} , TE_{01} et TE_{02} présentent les plus faibles pertes par propagation ; l'atténuation est donnée par la relation^(16,17)

$$\alpha_{nm} = \left(\frac{u_{nm}}{2} \right)^2 \frac{\lambda^2}{a^3} \begin{cases} (\eta^2 - 1)^{-1/2} & \text{pour les modes } TE_{0m} \\ \eta^2 (\eta^2 - 1)^{-1/2} & \text{pour les modes } TM_{0m} \\ \frac{1}{2} (\eta^2 + 1) (\eta^2 - 1) & \text{pour les modes } EH_{nm} \end{cases}$$

où : u_{nm} est le $m^{\text{ième}}$ zéro de J_{n-1}

η est l'indice de réfraction du diélectrique

λ est la longueur d'onde de la radiation.

A titre d'exemple : pour un guide en pyrex ($\eta \sim 2,5$), $a = 11 \text{ mm}$,

$\lambda = 300 \mu\text{m}$

$$\alpha_{EH_{11}} = 0.01 \text{ dBm}^{-1}$$

$$\alpha_{TE_{01}} = 0.08 \text{ dBm}^{-1}$$

$$\alpha_{TE_{02}} = 0.30 \text{ dBm}^{-1}$$

Contrairement aux modes TE_{01} et TE_{02} , le mode EH_{11} (cf Fig. I-2) a une configuration spatiale proche du mode gaussien TEM_{00} ; cette particularité permet de diminuer fortement les pertes par diffraction en plaçant les miroirs à l'extérieur du guide. Dans le cas de miroirs de grand rayon de courbure, le couplage est le plus efficace lorsque ceux-ci sont placés près des extrémités du guide (18,19,20).

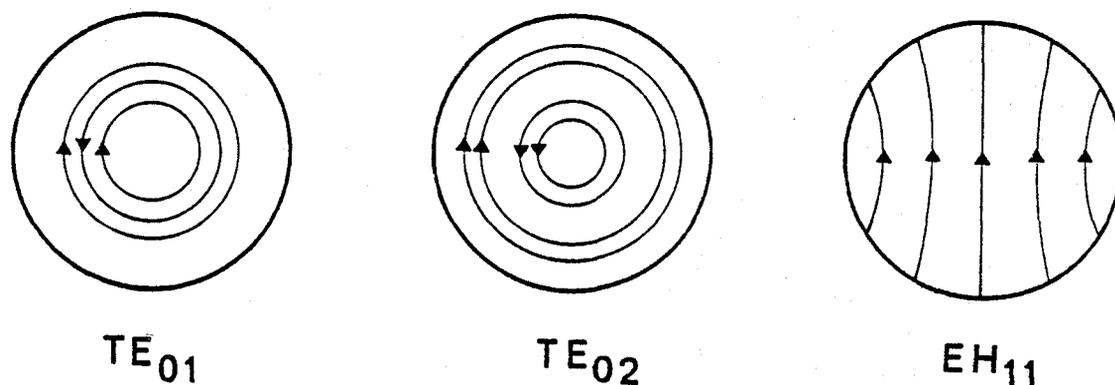


Figure I-2 : Polarisation électrique des principaux modes (d'après WOOD et al⁽¹⁵⁾).

I-4-a) Caractéristiques de la cavité

La cavité, de longueur 90 cm, est constituée d'un guide métallique ou diélectrique de diamètre intérieur 22 mm et de deux miroirs plans en laiton polis optiquement. Rappelons que le choix d'un grand diamètre de guide conduit à diminuer les pertes par propagation (en a^{-3}) alors qu'un faible diamètre permet une meilleure désexcitation vibrationnelle du milieu actif ($\Gamma_{diff} \sim \frac{1}{pa^2}$). Dans le cas des cavités métalliques, les pertes par propagation sont faibles et le diamètre peut être réduit à quelques longueurs d'onde tandis que les cavités diélectriques ont des pertes par propagation plus importantes et nécessitent des diamètres de guide plus grands ($\sim 100 \lambda$).

Le guide métallique utilisé est en laiton, sa surface interne est polie, les miroirs sont placés à l'intérieur du guide et ont un diamètre inférieur de 0,2 mm à celui du guide. Avec le guide diélectrique, en pyrex, les miroirs ont un diamètre de 28 mm et sont alors placés à 2 mm des extrémités du guide.

La cavité guide d'onde réalisée est représentée dans son ensemble par la figure I-3. Les miroirs sont orientables indépendamment l'un de l'autre à l'aide de trois vis à 120° et d'un joint torique. L'un des miroirs peut être translaté grâce à une platine Schneeberger (NKL3-80) dont on repère les déplacements à l'aide d'une vis micrométrique. Le miroir fixe est percé en son centre d'un trou conique permettant l'introduction du rayonnement de pompe suivant l'axe de la cavité et assurant le couplage de sortie pour l'émission SMM. Le diamètre du trou de couplage est de 3 mm ; il correspond à l'optimum de couplage de l'émission à $393,6 \mu\text{m}$ de l'acide formique et pour une puissance de pompe de la raie 9R18 du laser à CO_2 de $12 \text{ W}^{(21)}$.

La séparation des rayonnements IR et SMM est réalisée dans l'axe du miroir fixe, par un dispositif comprenant un miroir à 45° percé en son centre d'un trou conique pour le passage du rayonnement IR et deux fenêtres de natures différentes. L'une en ZnSe, placée sous incidence de Brewster, permet l'introduction du rayonnement de pompe tandis que l'autre, en quartz, transparente uniquement au rayonnement SMM évite le retour de l'IR sur le détecteur. Le réglage du miroir à 45° se fait en rotation et en translation par l'intermédiaire de deux vis, lors de l'alignement de la cavité SMM.

Le faisceau est introduit suivant l'axe de la cavité par deux miroirs de renvoi et un doublet de lentilles en ZnSe monté sur un banc d'optique. La position des deux lentilles est choisie afin que le faisceau de pompe, focalisé près du trou de couplage, présente un diamètre égal à celui du miroir, après un aller et retour dans la cavité. Cette disposition permet d'éviter, durant le premier trajet, les pertes résistives causées par les réflexions du faisceau de pompe sur le guide.

La longueur de la cavité, déterminée par la position des deux miroirs plans, est stabilisée par quatre barres d'Invar, un soufflet en laiton assure l'étanchéité et permet une éventuelle dilatation du guide sans modification de la longueur de la cavité. L'ensemble guide et miroirs est maintenu par des pièces massives en duralumin assurant une bonne stabilité mécanique. D'autre part, la source SMM complète : laser de pompe et cavités SMM, est fixée sur une table constituée d'une plaque

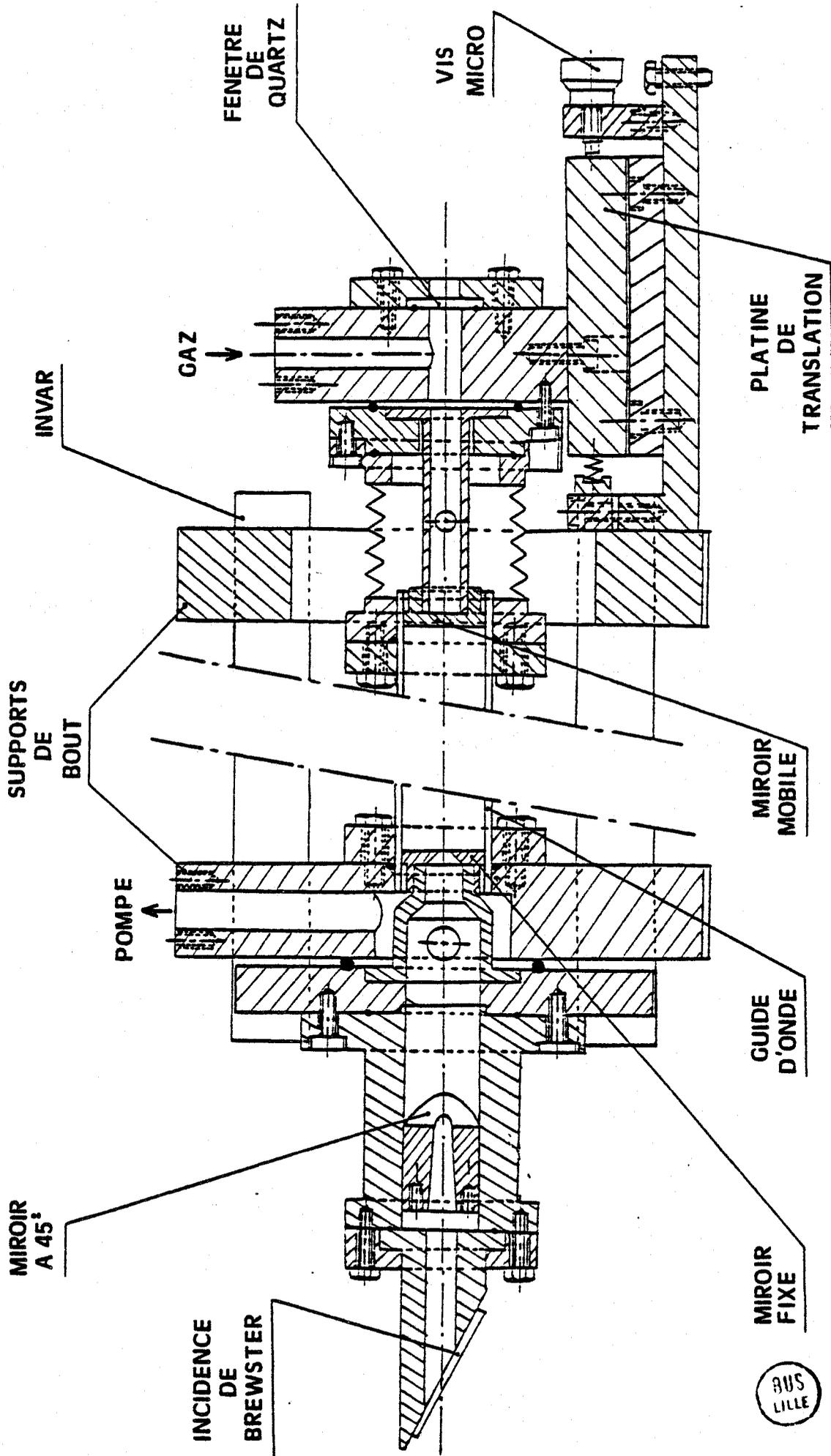


Figure I-3 : Schéma d'ensemble de la cavité guidée

de marbre reposant sur des chambres à air ; ce dispositif pneumatique affranchit l'ensemble de la source des vibrations mécaniques.

L'installation à vide, commune au résonateur ouvert et à la cavité guidée, comprend une pompe primaire à palettes et une pompe secondaire à diffusion d'huile ; elle permet d'atteindre une pression inférieure au millitorr dans l'enceinte. L'indication de pression dans la cavité est donnée par une jauge de Pirani ; l'utilisation d'une jauge à capacité "Datametrics" permet de mesurer la pression avec une précision de l'ordre du millitorr.

I-4-b) Performances

Nous n'avons pas effectué une étude systématique des émissions possibles de la cavité guidée. Signalons cependant qu'il a été possible d'observer les émissions de différentes molécules (HCOOH , H^{13}COOH , CH_3OH , HDCO , CH_3F , NH_3). Parmi celles-ci, une nouvelle émission de H^{13}COOH à $830 \mu\text{m}$ a été obtenue avec la raie 9R4 du laser à CO_2 , la mesure de sa longueur d'onde par interférogramme est en accord avec la prévision théorique de D. DANGOISSE⁽²²⁾ :

$$(6)16_{3,13} \rightarrow (6)15_{3,12} \quad (361.280 \text{ MHz}).$$

Précisons que les émissions de faibles longueurs d'onde sont obtenues plus aisément avec le guide diélectrique alors que la cavité métallique apparaît mieux adaptée pour la recherche d'émissions SMM de grandes longueurs d'onde. Ceci peut être interprété en comparant les pertes des deux cavités guidées. Aux faibles longueurs d'onde, les pertes de propagation sont faibles et ce sont les pertes par diffraction dues à la discontinuité entre le guide et chaque miroir qui prédominent ; la cavité diélectrique est alors mieux adaptée puisque la disposition des miroirs à l'extérieur du guide assure un couplage efficace. Par contre, aux grandes longueurs d'onde, les pertes de propagation sont plus importantes et la cavité métallique donne de meilleurs résultats.

Pour une même émission SMM, le relevé des interférogrammes des deux cavités guidées présente des différences notables : celui de la cavité diélectrique montre peu de modes d'ordres élevés et l'émission

laser est généralement "monomode" au contraire, pour la cavité métallique l'interférogramme est souvent complexe, plusieurs modes peuvent alors osciller simultanément ; ce fonctionnement "multimodes" est moins marqué à haute pression en accord avec les résultats obtenus par HODGES⁽²³⁾.

I - 5) CONCLUSION

Avant de préciser les résultats obtenus au cours de ce travail et afin de tirer le meilleur parti de la source SMM, il est intéressant de rappeler les propriétés spécifiques au résonateur ouvert et à la cavité guide d'onde.

L'utilisation des différentes cavités montre que l'interférogramme du résonateur ouvert est beaucoup plus facile à interpréter que celui de la cavité guide d'onde métallique. Cette particularité a permis de mettre en évidence, pour une même raie de pompe, la présence d'émissions "en cascade"⁽²⁴⁾ et d'en mesurer directement la longueur d'onde avant de procéder à une détermination plus précise de la fréquence par une méthode de battement. Notons aussi que la polarisation du rayonnement issu du résonateur Pérot Fabry est un élément d'information lors de l'identification des transitions SMM car la direction de polarisation est fonction de celle du rayonnement de pompe. Ceci n'est vrai que dans le cas du résonateur ouvert (et du guide diélectrique) puisque le rayonnement IR est dépolarisé par les réflexions multiples sur les parois du guide métallique. Ces différents éléments ainsi que la large gamme d'accord du résonateur ouvert ont permis d'obtenir l'identification et l'attribution de transitions moléculaires⁽²⁴⁾ dans un domaine de fréquences difficilement accessible par des sources classiques (carcinotrons, klystrons).

Les caractéristiques géométriques différentes de la cavité guide d'onde sont à l'origine de propriétés spécifiques à ce résonateur. Son faible diamètre assure une meilleure désexcitation vibrationnelle du milieu amplificateur et permet ainsi d'atteindre une valeur du gain par unité de longueur plus élevée que dans le résonateur ouvert. La structure plus compacte du laser guidé présente aussi un intérêt dans les expériences de résonances multiples car elle permet d'obtenir au sein du milieu

amplificateur des densités de puissance plus importantes ; dans le chapitre suivant on tire profit de cette particularité. Enfin, les faibles dimensions de ce type de cavité ont permis l'utilisation de grilles^(25,26,27,28) qui réalisent un couplage uniforme sur toute la section du mode et assurent ainsi une meilleure géométrie du faisceau de sortie tout en perturbant moins la répartition du champ à l'intérieur de la cavité. Rappelons que les performances des deux cavités : diélectrique et métallique, dépendent de la longueur d'onde et que l'échange des deux guides permet de couvrir une large gamme du domaine SMM. Toutefois, par suite de la présence simultanée de plusieurs émissions à des fréquences voisines liées au fonctionnement "multimodes" de la cavité métallique, l'interprétation des études réalisées dans ce résonateur peut devenir particulièrement difficile.

Les caractéristiques propres à chaque résonateur constituent donc des éléments importants pour déterminer la meilleure utilisation des différentes cavités.

CHAPITRE II

EFFETS DE DISPERSION
DANS LES EXPERIENCES
DE DOUBLE RESONANCE

Le laser SMM est le siège d'un grand nombre de phénomènes dont dépendent les caractéristiques de l'émission : effets de diffusion, de relaxations vibrationnelle et rotationnelle ou de compétition de modes. Ce type de laser se prête aussi très bien à la réalisation d'expériences destinées à préciser le comportement des molécules actives.

Ce chapitre porte sur quelques effets de dispersion observés dans des expériences de double résonance sur le milieu actif du laser SMM.

Dans les expériences de double résonance entreprises ici, on observe les variations de la puissance émise par le laser soumis à une irradiation microonde (MW) résonnante. Nous montrons dans ce chapitre que cette irradiation peut modifier non seulement l'intensité mais aussi la fréquence d'émission du laser.

Précisons que le terme double résonance est impropre dans le cas présent puisqu'il faut prendre en compte trois champs pour décrire l'évolution du milieu moléculaire. Nous conserverons néanmoins cette appellation par souci de simplicité. Notons de plus, que nous sommes souvent dans une situation voisine de la pure double résonance ne faisant intervenir que deux champs. C'est notamment le cas de toutes les expériences qui s'interprètent par un traitement d'équations de population où l'on considère que le seul rôle du champ IR est de créer un état d'inversion de population ; les effets de double résonance ont alors trait au couplage de l'émission SMM avec le rayonnement MW.

Nous nous sommes limités à des effets de double résonance sur des transitions dont l'un des niveaux est commun avec ceux mis en jeu dans le processus d'émission du laser SMM. Dans les expériences décrites ici, la fréquence du champ additionnel est comprise entre 10 et 25 GHz. L'étude a porté principalement sur les transitions de dédoublement K des toupies asymétriques HCOOH et H¹³COOH mais des effets de double résonance ont aussi été observés sur une transition d'inversion de NH₃.

Les résultats exposés sont essentiellement expérimentaux et complémentaires des premières études de double résonance dans un milieu laser optiquement pompé réalisées par D. DANGOISSE *et al.* ^(24,29,30).

Dans la première partie de ce chapitre, nous rappelons le principe des expériences de double résonance, la deuxième partie étant consacrée au montage expérimental. Les parties II-3 et II-4 présentent les résultats obtenus et proposent une interprétation des effets observés.

II - 1) LE PRINCIPE DES EXPERIENCES

Un exemple de diagramme des niveaux d'énergie intervenant dans les études de double résonance est représenté à la figure II-1. Quatre niveaux, au minimum, doivent être pris en compte, il s'agit des trois niveaux principalement responsables du processus d'émission SMM et d'un niveau supplémentaire noté $|a\rangle$ qui peut appartenir indifféremment à l'état vibrationnel inférieur ou supérieur.

Nous supposons qu'une transition entre le niveau $|a\rangle$ et l'un des niveaux $|v,1\rangle$ ou $|v',j\rangle$ est permise par les règles de sélection de type dipolaire électrique. L'introduction dans la cavité laser d'un rayonnement dont la fréquence est en résonance ou en quasi-résonance avec la transition mentionnée ci-dessus provoque des variations de la puissance de sortie et de la fréquence de l'émission SMM.

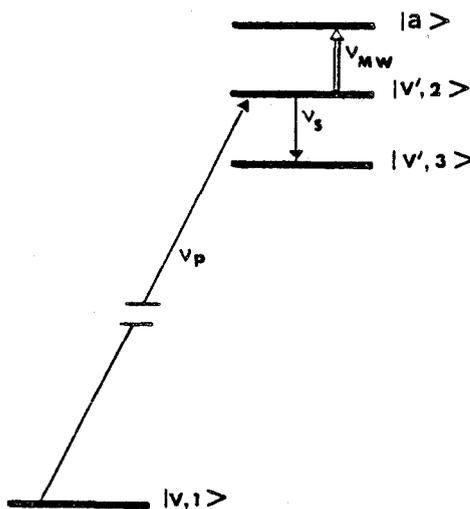


Figure II-1 : Diagramme des niveaux d'énergie (cas particulier où le rayonnement MW connecte le niveau supérieur de la transition SMM).

Les premières études réalisées dans le résonateur Pérot Fabry montrent que le type d'effet observé dépend de la puissance du champ supplémentaire. Lorsque celui-ci est peu intense, les variations de l'émission SMM peuvent s'expliquer par un modèle de transferts de population^(24, 29). En revanche, avec un champ fortement saturant, l'émission SMM présente un dédoublement de type Autler-Townes⁽²⁴⁾ et l'analyse théorique nécessite un traitement plus élaboré afin de tenir compte des effets de cohérence entre les différents états concernés⁽²⁴⁾.

II - 2) LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Les expériences ont été réalisées avec la cavité guide d'onde métallique dont le faible diamètre assure le confinement du champ MW et permet d'obtenir, à l'intérieur de la cavité laser, une densité de puissance plus importante que dans le résonateur ouvert.

Le dispositif expérimental, destiné à mettre en évidence les variations d'amplitude de l'émission SMM induites par le champ MW est représenté par la figure II-2. Il se compose de la source SMM, d'une source MW et d'une détection de la puissance SMM émise. Pour mesurer l'effet de double résonance sur la fréquence SMM, la détection non sélective utilisée lors des mesures de variations d'intensité doit être remplacée par une détection superhétérodyne (cf Fig. II-3).

Dans un premier temps, nous rappelons les caractéristiques de la source microonde utilisée ainsi que le mode de couplage de ce rayonnement supplémentaire à l'intérieur de la cavité laser. Le second paragraphe rappelle les caractéristiques de la détection superhétérodyne et précise ses performances.

II-2-a) La source microonde et la détection de la puissance SMM émise.

Dans le domaine de fréquences considéré ici (10-25 GHz), le diamètre du guide d'onde de la cavité laser est comparable à la longueur d'onde ; les modes à plus faibles pertes sont alors les modes TE_{01} et TE_{11} ⁽³¹⁾. Ce dernier n'est pas polarisé circulairement et peut être

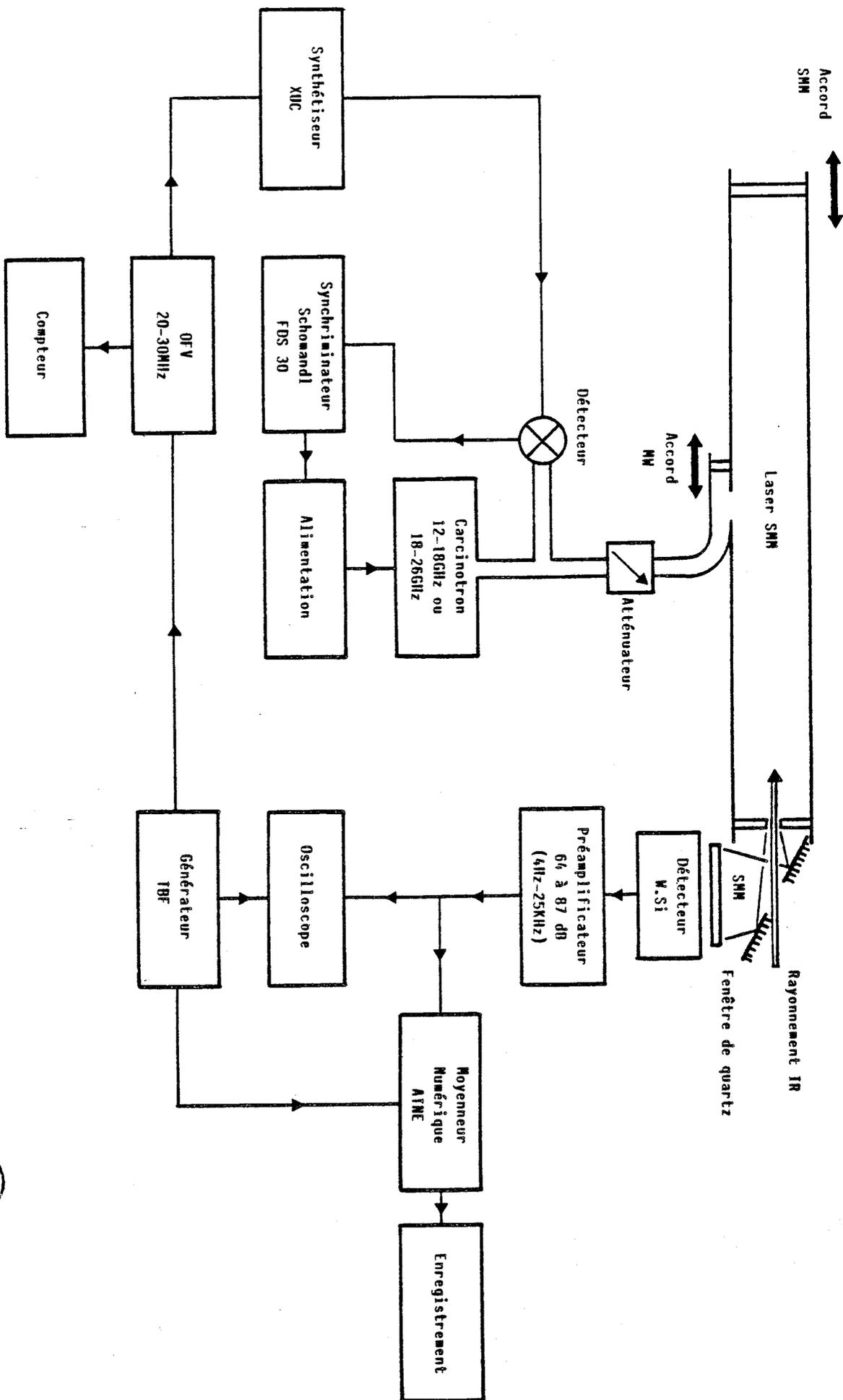


Figure II-2 : Dispositif expérimental



excité par le mode fondamental TE_{01} d'un guide rectangulaire. Nous avons assuré le couplage entre les deux guides par une ouverture rectangulaire dont les dimensions : 9 mm de longueur et 3 mm de largeur ont été déterminées par essais successifs pour assurer un couplage large bande. Cette ouverture est réalisée sur le grand côté d'un guide d'onde rectangulaire de la bande X et sur le guide circulaire parallèlement à l'axe de la cavité laser. L'adaptation entre les deux guides est effectuée d'une part au moyen d'un piston de court-circuit placé en bout du guide rectangulaire (cf Fig. II-2). D'autre part, la grande différence des longueurs d'onde SMM et MW permet de trouver une longueur de cavité SMM telle que l'accord soit réalisé simultanément aux deux fréquences (SMM et MW). Afin de déterminer l'efficacité du couplage, nous avons remplacé momentanément l'un des miroirs de la cavité par un détecteur monté en structure guidée, l'essai montre que 70% de la puissance microonde incidente peut être transmise à l'intérieur de la cavité. En cours de fonctionnement, ce détecteur placé temporairement derrière la fenêtre de quartz, permet de vérifier le bon accord des différents éléments.

Le rayonnement microonde est fourni par un carcinotron stabilisé en phase dont la puissance disponible est de 50 mW. L'étalon radiofréquence utilisé pour l'asservissement du carcinotron est un synthétiseur de fréquence XUC RODHE et SCHWARTZ qui fournit des fréquences discrètes de 10 MHz en 10 MHz entre 470 et 1000 MHz. Les fréquences intermédiaires sont obtenues grâce à un interpolateur 20-30 MHz (OFV) dont la fréquence peut être comptée et balayée électriquement ; on obtient ainsi l'échelle en fréquence du rayonnement microonde.

Le signal SMM issu de la cavité est détecté par une diode à pointe tungstène-silicium, montée dans un support "Custom Microwave MU 135" ; ce type de détecteur est d'une utilisation délicate à cause de la fragilité mécanique du contact réalisé entre le fil de tungstène et la base de silicium.

Après amplification, le signal SMM est visualisé directement à l'oscilloscope ou transcrit sur une table traçante par l'intermédiaire d'un moyennneur numérique ATNE.

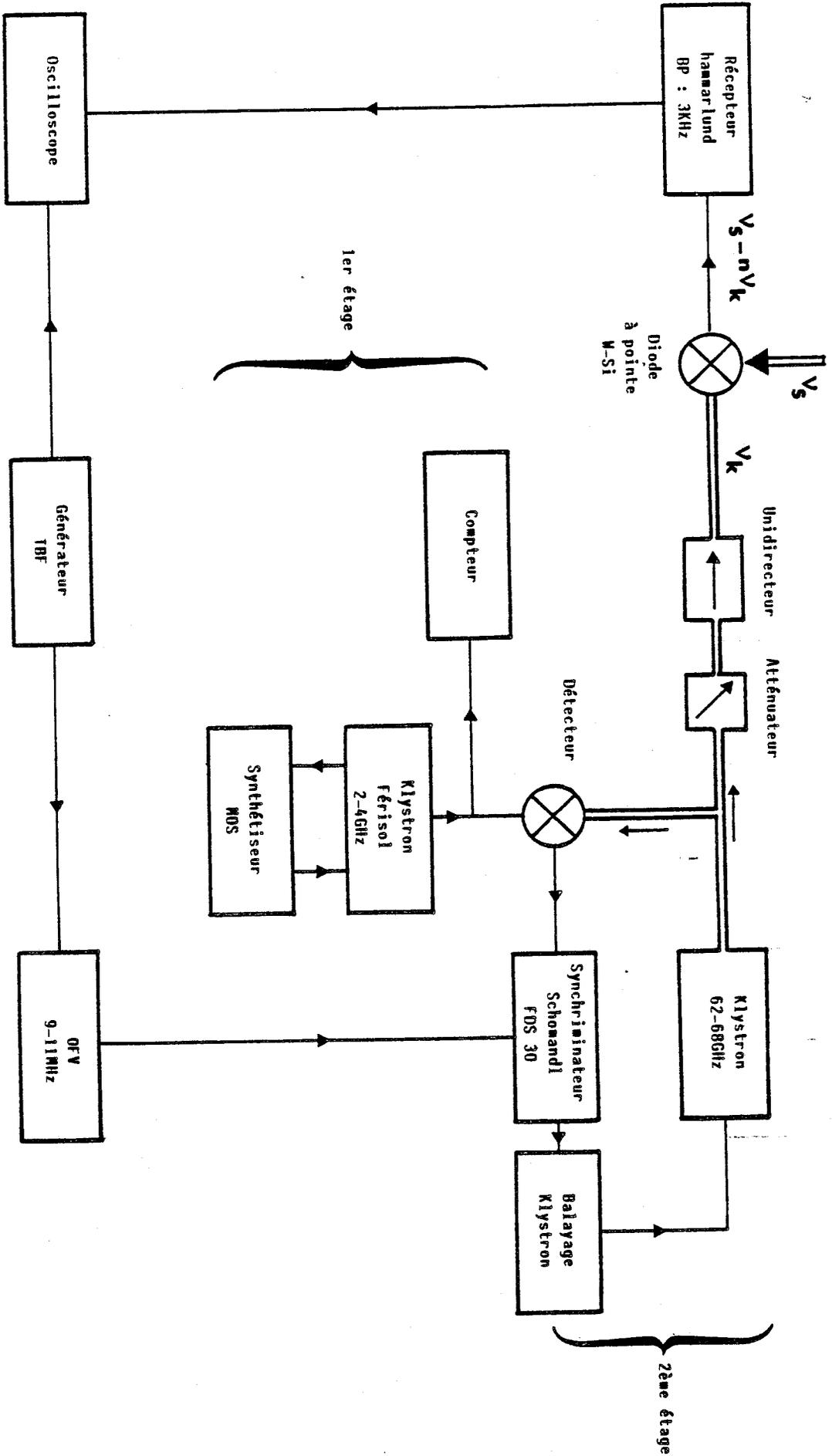


Figure II-3 : La détection superhétérodynne



II-2-b) La détection superhétérodyne

La mesure de la fréquence SMM est réalisée par une technique de battement bien connue au laboratoire (cf Fig.II-3). Le battement provient du mélange de l'émission SMM avec une harmonique de rang élevé d'un klystron millimétrique stabilisé en phase. Le mélange des deux rayonnements est effectué sur la diode à pointe ; cette opération est facilitée par l'utilisation d'un unidirecteur et d'un atténuateur permettant de doser la puissance du rayonnement millimétrique et d'obtenir ainsi un niveau de battement optimal.

Ce procédé permet de déterminer la fréquence des raies laser avec une précision de 0,5 à 1 MHz. En fait la précision de mesure n'est pas limitée par l'appareillage mais résulte essentiellement de la difficulté de situer la position de la fréquence centrale du profil d'émission du laser. La précision réelle sur la mesure de la fréquence d'émission est bien meilleure ; elle est habituellement limitée par les qualités spectrales de la source millimétrique. Compte tenu des faibles variations de fréquences induites par double résonance, l'emploi de sources de grande pureté spectrale est impératif pour éviter que les fluctuations de la fréquence du klystron ne limitent trop gravement la résolution de l'appareillage.

L'asservissement en phase du klystron est réalisé au moyen d'une chaîne de stabilisation à deux étages. Le premier étage est constitué d'un klystron Ferisol 2-4 GHz asservi sur un synthétiseur MOS. Cet ensemble permet de stabiliser le klystron millimétrique par l'intermédiaire d'un synchriminateur Schomandl (FDS 30). Un oscillateur dont la fréquence est variable entre 9 et 11 MHz (OFV) permet de balayer la fréquence du klystron au niveau du deuxième étage pour limiter l'importance du bruit de fréquence de cet oscillateur.

Le signal de battement est alors visualisé par un marqueur qui traduit la réponse d'un récepteur à bande étroite (3 kHz) lorsque la fréquence du battement est égale à la fréquence d'accord du récepteur. Le déplacement du marqueur rend compte directement des variations en fréquence de l'émission SMM.

La figure II-4 représente le meilleur résultat obtenu après avoir adapté précisément les gains et les constantes de temps des différentes boucles d'asservissement de la stabilisation. Le battement à 54 MHz résulte du mélange de la raie d'émission à 380 004 MHz de $H^{13}COOH$ avec l'harmonique de rang 6 d'un klystron Varian (VRE - 2103 B16). Des marqueurs distants de 18 kHz fournissent une échelle de fréquence ; la largeur à mi-hauteur du signal de battement est de l'ordre de 3 kHz, valeur qui correspond à la bande passante du récepteur utilisé. Dans ces conditions, la fréquence d'émission du laser est mesurée à environ 1 kHz près. En fait, des instabilités basse fréquence du laser de pompe essentiellement limitent la précision de mesure à 10 kHz.

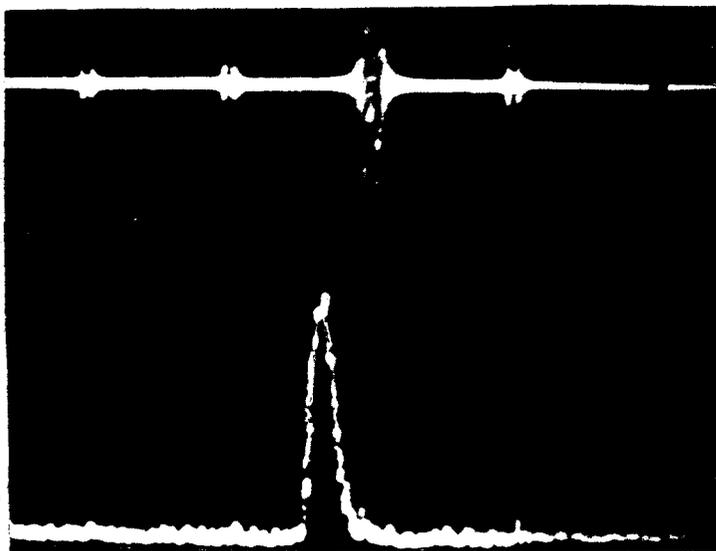


Figure II-4 : Photographie montrant le signal de battement détecté de l'émission SMM avec l'harmonique 6 de la fréquence d'un klystron. L'échelle de fréquence est fournie par un synthétiseur Adret Indépendant du montage expérimental.

II - 3) INFLUENCE DE L'IRRADIATION MW SUR LA PUISSANCE EMISE PAR LE
LASER : EFFETS DE POPULATION.

II-3-a) Résultats expérimentaux

Les résultats présentés sont relatifs à la molécule d'acide formique HCOOH dont le diagramme partiel des niveaux d'énergie est représenté par la figure II-5 ; l'identification et la mesure précise de la fréquence des transitions ont été réalisées au laboratoire^(32,33). La raie de pompe 9R40 du laser à CO₂ donne naissance à deux émissions dont l'une, sans niveau commun avec la transition IR est une cascade de l'émission principale. Notons que les fréquences peu élevées de l'émission principale (403 721 MHz) et de la cascade (381 336 MHz) facilitent l'utilisation de la détection superhétérodyne.

La disposition choisie permet de présenter l'ensemble des effets de double résonance que nous avons aussi observé sur d'autres molécules.

Les trois transitions MW accessibles ont pour fréquence :

(0) 19 _{3,16}	↔	(0) 19 _{3,17}	23 203 MHz (a)	-
(6) 18 _{3,15}	↔	(6) 18 _{3,16}	17 435 MHz (b)	
(6) 17 _{3,14}	↔	(6) 17 _{3,15}	12 710 MHz (c)	

La transition notée (c) possède un niveau commun avec les deux émissions SMM et permet donc l'observation de double résonance sur l'émission principale (6) 18_{3,16} → (6) 17_{3,15} et sur la cascade (6) 17_{3,15} → (6) 16_{3,14}

La figure II-5 montre la variation de l'intensité SMM en fonction de la fréquence de l'irradiation MW. Ces enregistrements ont été obtenus avec une puissance IR de 4W et pour une fréquence de résonance de la cavité SMM correspondant à la fréquence centrale du profil d'émission du laser.

L'amplitude des signaux de double résonance observés correspond à une variation relative de l'intensité SMM $\frac{\Delta I_S}{I_S} \sim 20$ à 30% ; cette

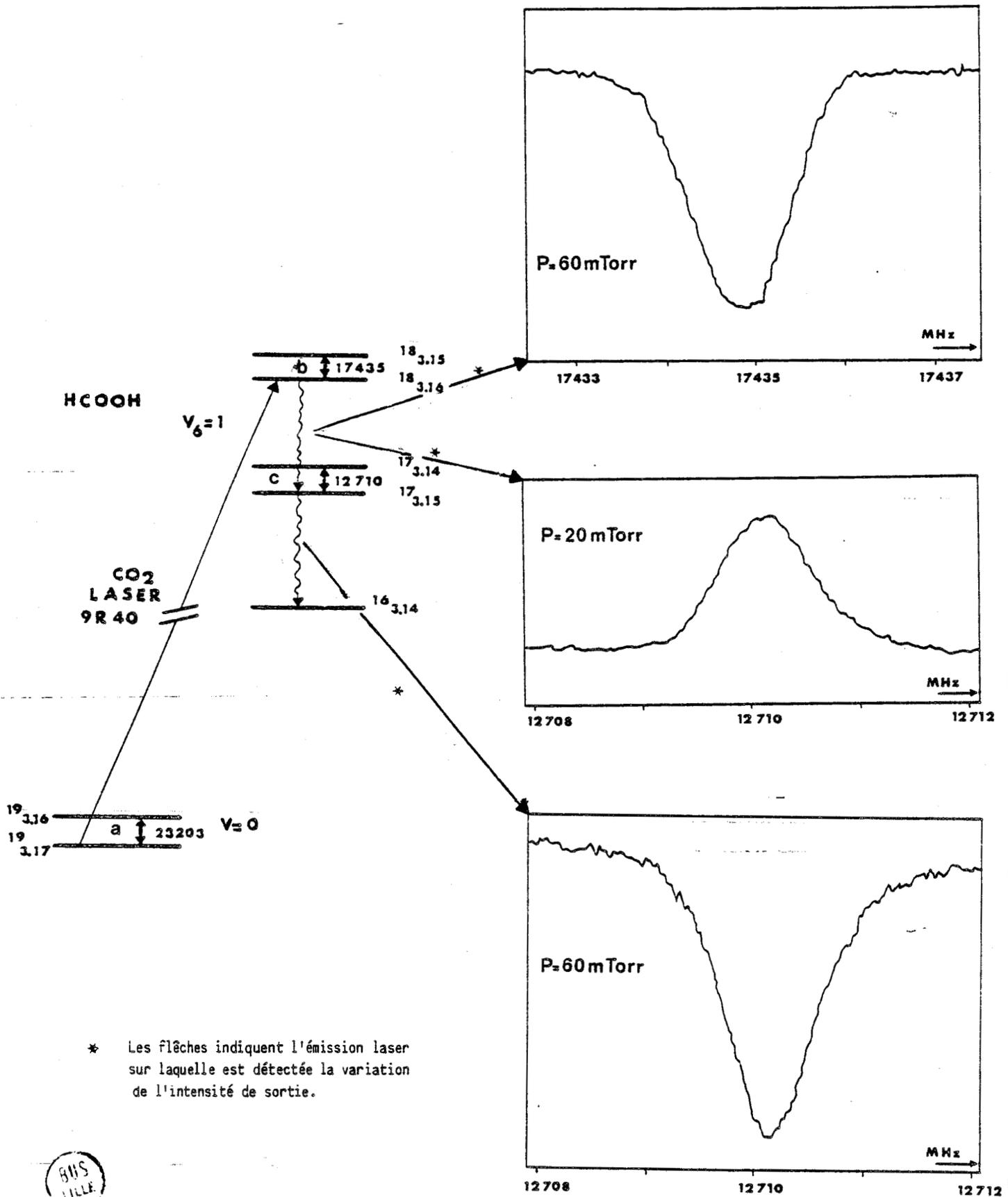


Figure II-5 : Diagramme des niveaux d'énergie et variation de l'intensité SMM en fonction de la fréquence de rayonnement microonde.

valeur, comparée aux variations obtenues dans le résonateur ouvert (<1%), illustre l'intérêt d'utiliser un laser guide d'onde métallique dans les expériences de double résonance SMM-MW.

Remarquons que l'intensité du rayonnement MW est suffisante pour produire, à basse pression, un élargissement par saturation des signaux de double résonance. Toutefois, la valeur de la pulsation de Rabi ($\frac{\mu E}{\hbar}$) associée à la transition MW, n'est pas supérieure à l'élargissement collisionnel et il n'a pas été possible de mettre en évidence un dédoublement de l'émission SMM par effet Autler-Townes. De même, le relevé de l'interférogramme en absence et en présence de champ MW (transition (b)) ainsi qu'une analyse en fréquence du rayonnement SMM montrent que la densité de puissance MW à l'intérieur de la cavité ne permet pas de créer une inversion de population suffisante entre les niveaux $(6) 18_{3,15}$ et $(6) 17_{3,14}$ pour donner naissance à une nouvelle émission SMM

II-3-b) Discussion

Dans ce paragraphe nous discutons des mécanismes par lesquels la double résonance peut affecter la puissance émise par le laser. Cette discussion est basée sur l'expression du gain du laser ($\alpha(v_s)$) qui, dans le cas d'un élargissement homogène de la transition SMM peut se mettre sous la forme locale suivante ⁽³⁴⁾ :

$$\alpha(v_s) = \frac{\alpha_0(v_s)}{1 + \frac{I_s(v_s)}{I_{sat}(v_s)}} \quad (\text{II.1})$$

où : $\alpha_0(v_s)$ est le gain en champ nul

$I_{sat}(v_s)$ représente le paramètre de saturation (valeur de l'intensité pour laquelle $\alpha(v_s) = \alpha_0(v_s) / 2$)

En présence d'un champ MW, on peut établir par un traitement d'équations de population une relation identique ⁽²⁴⁾ :

$$\alpha'(v_s) = \frac{\alpha'_0(v_s)}{1 + \frac{I'_s(v_s)}{I'_{sat}(v_s)}} \quad (\text{II.2})$$

où les quantités primées définissent de même le gain en champ nul et le paramètre de saturation mais cette fois en présence de rayonnement MW.

En régime stationnaire, la condition d'oscillation du laser exprime que le gain du milieu amplificateur compense les pertes totales de la cavité. Remarquons que les pertes de la cavité ne sont pas modifiées par la présence du champ MW et la condition d'oscillation permet donc de relier simplement les différentes quantités :

$$\alpha(v_s) = K = \alpha'(v_s) \quad (\text{II.3})$$

où K représente les pertes totales de la cavité supposées réparties uniformément sur toute la longueur.

La relation (II.3) permet d'exprimer la variation de l'intensité SMM induite par le rayonnement MW. En posant :

$$I'_s = I_s + \Delta I_s$$

$$I'_{sat} = I_{sat} + \Delta I_{sat}$$

$$\alpha'_0 = \alpha_0 + \Delta \alpha_0$$

on obtient une expression au 1er ordre de ΔI_s (en négligeant $\frac{\Delta \alpha_0}{\alpha_0} \cdot \frac{\Delta I_{sat}}{I_{sat}}$)

$$\frac{\Delta I_s}{I_s} = \left(1 + \frac{I_{sat}}{I_s}\right) \frac{\Delta \alpha_0}{\alpha_0} + \frac{\Delta I_{sat}}{I_{sat}} \quad (\text{II.4})$$

Cette relation exprime la variation de l'intensité SMM émise en fonction de la variation du gain en champ nul ($\Delta \alpha_0$) et de la modification du paramètre de saturation (ΔI_{sat}).

La modification du gain en champ nul s'interprète aisément lorsque le rayonnement MW affecte le niveau supérieur de la transition laser. En effet, supposons que l'émission SMM ne soit pas établie, le couplage MW réalisé avec le niveau supérieur de la transition laser,

diminue la population de celui-ci et entraîne ainsi une diminution du gain en champ nul ($\Delta\alpha_0 < 0$).

La modification du paramètre de saturation apparaît clairement lorsque le rayonnement MW couple le niveau inférieur de la transition laser. Rappelons que la saturation exprime la non linéarité entre le gain et l'inversion de population provoquée par un champ SMM suffisamment intense pour dépeupler le niveau supérieur de la transition SMM et réduire ainsi l'inversion de population existant en champ nul. Lorsque le champ MW couple le niveau inférieur de la transition laser, il dépeuple ce niveau et limite ainsi le phénomène de saturation causé par un champ laser suffisamment intense. Dans ce cas, la présence du champ MW entraîne donc une augmentation du paramètre de saturation ($\Delta I_{\text{sat}} > 0$).

La détermination du signe de la variation de ΔI_s nécessite la connaissance explicite de $\Delta\alpha_0$ et ΔI_{sat} . Ces deux quantités ayant été calculées dans le thèse d'état de D. DANGOISSE⁽²⁴⁾ pour plusieurs dispositions des niveaux d'énergie, nous remarquerons simplement que les deux transitions MW : (b) et (c) qui connectent respectivement les niveaux supérieurs des transitions SMM : $(6) 18_{3,16} \rightarrow (6) 17_{3,15}$ (principale) et $(6) 17_{3,15} \rightarrow (6) 16_{3,14}$ (cascade), diminuent l'inversion de population et donc l'intensité émise par le laser. Au contraire, la transition MW (c) augmente l'inversion de population entre les niveaux connectés par l'émission principale et accroît ainsi l'intensité émise sur cette raie (cf Fig.II-5).

Considérons à présent, la transition (a) qui connecte les niveaux de rotation $(0) 19_{3,16}$ et $(0) 19_{3,17}$ dans l'état fondamental de vibration (cf Fig.II-5). Contrairement aux transitions (b) et (c) envisagées précédemment, le couplage dans le niveau fondamental de vibration ne modifie pas directement la population des niveaux connectés par le rayonnement SMM. Le signe de la variation de l'intensité SMM peut alors s'interpréter comme une modification de l'efficacité du pompage en présence de rayonnement MW.

En absence d'irradiation MW, le rayonnement IR crée une inversion de population entre les niveaux $(0) 19_{3,16}$ et $(0) 19_{3,17}$ en

dépeuplant le niveau inférieur de la transition de pompe $(0) 19_{3,17}$. Rappelons que ceci ne concerne que la classe de vitesse participant au mécanisme de pompage. Le transfert de population réalisé par le rayonnement MW repeuple le niveau $(0) 19_{3,17}$ au détriment du niveau $(0) 19_{3,16}$ et améliore ainsi l'efficacité du pompage IR. Nous pouvons aussi considérer que le rayonnement MW augmente l'efficacité du pompage IR par un processus à deux photons : absorption simultanée d'un photon IR et d'un photon MW entre les niveaux $(0) 19_{3,16}$ et $(6) 18_{3,16}$.

II - 4) EFFETS DE DISPERSION

II-4-a) Présentation des effets de dispersion

Au cours de la partie précédente, nous avons interprété le sens des variations de l'amplitude de l'émission SMM par un bilan des transferts de population entre les niveaux connectés par les rayonnements MW et SMM.

Le modèle de transferts de population facilite l'analyse des signaux observés mais il néglige tout effet de cohérence entre les différents états. En revanche, ceux-ci sont pris en compte dans le formalisme de la matrice densité qui conduit à la détermination de la polarisation diélectrique du milieu moléculaire induite par les différents rayonnements. La connaissance de la polarisation du milieu moléculaire permet alors de déterminer la susceptibilité diélectrique : $\chi = \chi' + i\chi''$.

Les variations de l'amplitude de l'émission SMM sont expliquées par une modification de la partie imaginaire (χ'') de la susceptibilité diélectrique tandis que la partie réelle (χ') exprime la variation de l'indice (n) du milieu : phénomène de dispersion.

Dans un milieu dilué ($\chi \ll 1$), l'indice est simplement lié à la partie réelle χ' de la susceptibilité par la relation :

$$n = 1 + \frac{\chi'}{2} \quad (\text{II.5})$$

Les effets de dispersion apparaissent toujours simultanément avec les variations de l'amplitude de l'émission SMM, théoriquement l'absorption.

ou l'émission sont liées à la dispersion par une relation de KRAMERS-KRONIG⁽³⁵⁾.

Avant de préciser les effets d'indice observés dans les expériences de double résonance, rappelons quelques aspects de ces effets qui ont été mis en évidence dans les lasers SMM sans introduire de champ supplémentaire dans la cavité.

Dans un laser SMM, la dispersion provoque des effets différents selon qu'elle se manifeste sur le rayonnement de pompe ou sur l'émission SMM. Plusieurs études ont souligné ces effets, notamment avec des lasers SMM de grande puissance, fonctionnant en régime pulsé.

SIEGRIST *et al*⁽³⁶⁾ ont par exemple mis en évidence expérimentalement des effets d'autofocalisation et de défocalisation du faisceau de pompe dus à une variation de l'indice du milieu au voisinage de la fréquence de pompe. Ces expériences illustrent la dépendance de l'indice du milieu en fonction de l'intensité du rayonnement de pompe et montrent l'influence de la dispersion sur un faisceau de structure gaussienne.

TEMKIN *et al*^(37, 38) ont développé un traitement théorique de l'absorption et de la dispersion sur un système à 3 niveaux dans le cas de champs IR et SMM d'intensités quelconques. Ils ont aussi observé des variations de l'indice du milieu à la fréquence SMM pour différentes intensités du rayonnement de pompe. La dispersion à la fréquence SMM se traduit alors par des variations de la fréquence d'émission du laser.

En effet, la fréquence d'oscillation du laser (ν_s) s'exprime en fonction de la partie réelle de la susceptibilité diélectrique par la relation :

$$\nu_s \left(1 + \frac{\chi'(\nu_s)}{2} \right) = \nu_c \quad (\text{II.6})$$

où ν_c est la fréquence de résonance de la cavité passive.

Dans les expériences de double résonance présentées ici, les effets sont observés sur l'émission SMM et ils résultent de la modification de la susceptibilité diélectrique à la fréquence SMM due au champ MW. Cette modification entraîne d'après la relation (II.6) une

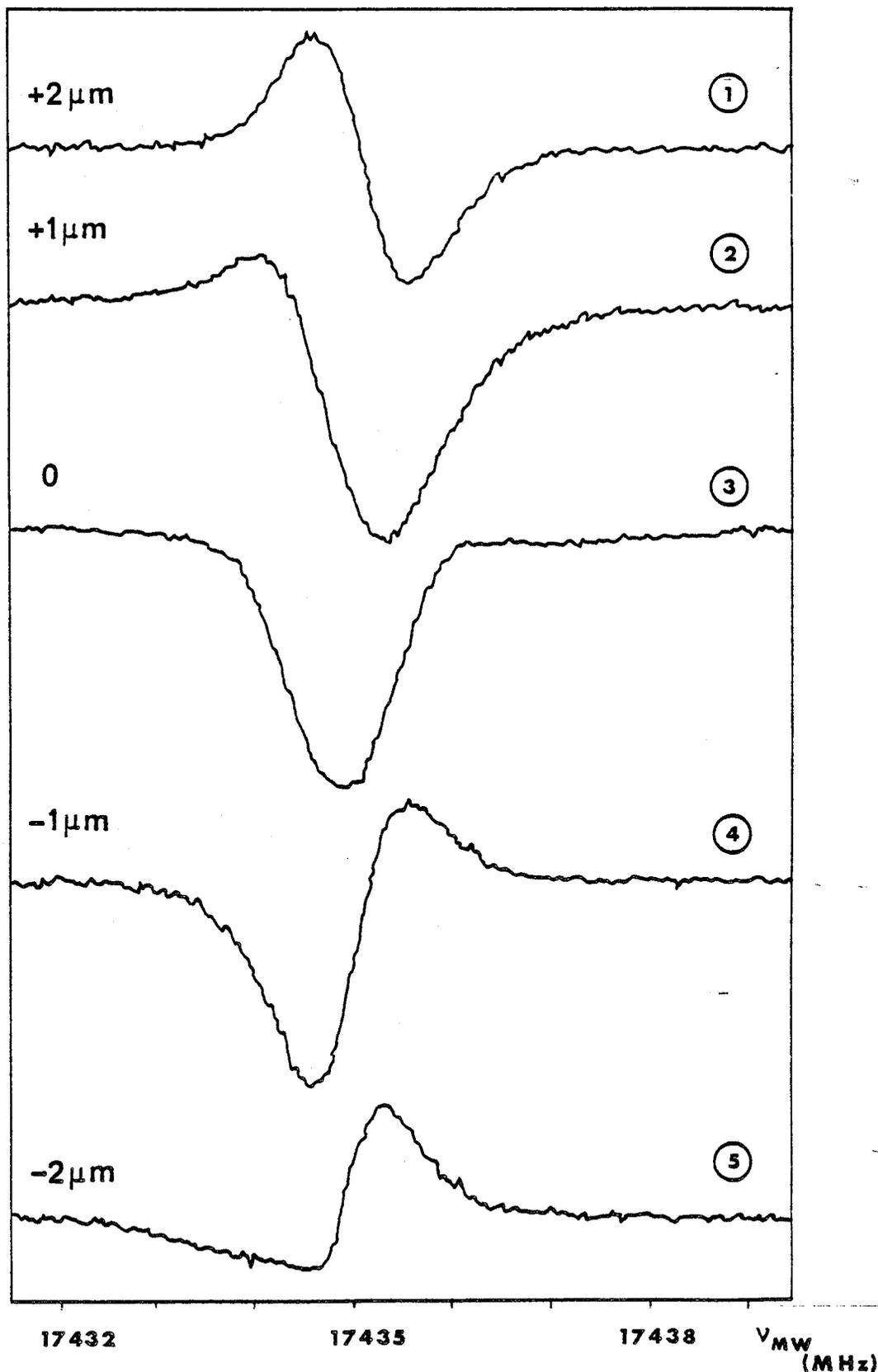


Figure II-6 : Variation de la puissance SMM émise pour différentes valeurs de la fréquence d'accord de la cavité.
 Emission principale (403 721 MHz) et transition MW
 $(6)18_{3,15} \leftrightarrow (6)18_{3,16}$ (17 435 MHz). Pression du milieu amplificateur : 60 mTorr ; puissance de pompe : 4W.



variation de la fréquence d'émission du laser que nous avons mesuré.

Avant de présenter cette mesure, nous exposons d'abord un premier ensemble de résultats expérimentaux qui nous ont conduit à considérer les effets d'indice dans les expériences de double résonance.

II-4-b) Effets de dispersion observés sur la puissance de sortie

Les résultats expérimentaux présentés dans la partie précédente, ont été obtenus lorsque la fréquence d'accord de la cavité SMM correspondait à la fréquence centrale du profil d'émission ; dans ce cas, la forme des signaux observés est alors sensiblement lorentzienne.

Il n'en est plus de même lorsque la longueur de la cavité SMM est déplacée par rapport à la position centrale précédente ; on observe alors des signaux asymétriques pour les différentes transitions MW précédemment étudiées.

La figure II-6 illustre cet effet ; les enregistrements présentés sont obtenus en détectant l'émission principale et sont relatifs à la transition MW (b) qui connecte le niveau supérieur de la transition laser.

Remarquons tout d'abord que, pour l'enregistrement 3 obtenu lorsque la cavité est accordée au centre du profil d'émission, nous retrouvons la variation de puissance émise obtenue précédemment (Fig. II-5). L'enregistrement 1 a été réalisé après avoir augmenté la longueur de la cavité de $2 \mu\text{m}$ par rapport à la position centrale précédente. Pour cet accord de la cavité qui correspond à une puissance émise égale à la moitié de celle obtenue au centre du profil d'émission, la variation de la puissance émise par le laser tend vers une forme de pure dispersion. L'aspect du signal est alors une forme dérivée de lorentzienne. L'enregistrement 2 présente une forme asymétrique due à la superposition des formes d'absorption et de dispersion ; cet enregistrement a été obtenu pour une augmentation de la longueur de la cavité de $1 \mu\text{m}$. Les enregistrements 4 et 5, réalisés après avoir diminué la longueur de la cavité de 1 et $2 \mu\text{m}$ par rapport à la position centrale (enregistrement 3),

montrent clairement un changement de sens des figures, observé de part et d'autre du sommet de la courbe de gain.

L'évolution de la forme des signaux en fonction de la fréquence d'accord de la cavité SMM nous conduit à formuler les remarques suivantes :

- d'une part, l'effet n'est important que si la puissance émise dépend fortement de la fréquence d'oscillation du laser : négligeable au sommet du profil d'émission et important lorsque le laser oscille sur les points à mi hauteur de la courbe de gain.

- d'autre part, le changement de pente de la courbe de réponse de la cavité se traduit par un changement de sens des courbes observées.

Ceci nous conduit à considérer que la variation de la puissance SMM émise résulte d'une part des effets de variation du gain et de l'intensité de saturation précédemment décrits et d'autre part de la discrimination des effets de dispersion ou de tirage en fréquence du laser.

La superposition de ces deux phénomènes rend difficile une analyse plus précise des variations de la puissance SMM émise ; de plus, les enregistrements présentés ne sont qu'une mise en évidence indirecte des effets de dispersion.

Enfin, précisons que dans le laser guide d'onde métallique utilisé, la plupart des résonances de la cavité ne sont pas symétriques par rapport à la position de la fréquence centrale d'émission. Les figures observées sont alors souvent difficiles à interpréter car elles résultent de la superposition de plusieurs effets. Ceci est dû principalement au nombre élevé de modes qui oscillent simultanément dans la cavité métallique. De plus les différentes résonances montrent aussi que les deux émissions SMM (principale ou cascade) sont présentes pour un même accord de cavité.

Pour éviter ces difficultés, nous avons entrepris dans un second temps une observation directe de la fréquence d'émission du laser.

II-4-c) Effets de dispersion observés sur la fréquence du laser

L'expérience est maintenant réalisée pour une longueur donnée de la cavité SMM et les variations de la fréquence d'émission sont mises en évidence par une technique de battement dont les performances ont été rappelées plus haut (cf II-2-b). Contrairement aux études précédentes, le grand pouvoir sélectif de la détection superhétérodyne permet d'isoler ici le rayonnement émis dans une petite gamme de fréquence et donc de s'affranchir des effets liés à la détection simultanée de la raie principale et de la cascade.

La figure II-7 représente la variation de la fréquence d'émission en cascade (381 336 MHz) provoquée par l'irradiation du milieu actif à une fréquence voisine de 12 710 MHz correspondant à la transition $(6) 17_{3,14} \rightarrow (6) 17_{3,15}$. La sélection de l'émission en cascade permet de supprimer la contribution des phénomènes liés à la cohérence du pompage et ramène donc à trois le nombre des niveaux d'énergie à considérer. Notons que nous avons observé le même sens de variation de la fréquence de l'émission principale (403 721 MHz) en présence de rayonnement MW à une fréquence de 17 435 MHz $(6) 18_{3,16} \rightarrow (6) 18_{3,15}$.

Au voisinage de la fréquence de transition MW, la fréquence de l'émission SMM évolue en suivant une loi de type dérivée de lorentzienne. L'amplitude du décalage maximal observé (~ 40 kHz) croît avec la puissance microonde mais la forme obtenue reste inchangée. Précisons aussi que les expériences de double résonance réalisées ne montrent pas de modification de la forme des signaux pour différentes puissances du champ IR. Le déplacement de fréquence observé correspond à une variation de l'indice de réfraction du milieu de l'ordre de 10^{-7} .

II-4-d) Comparaison avec les résultats théoriques

Nous avons comparé la variation obtenue avec les résultats théoriques développés dans la thèse de B. MACKÉ⁽³⁵⁾ et relatifs à un système composé de 3 niveaux soumis à l'irradiation de deux champs MW. Ce traitement théorique est basé sur le calcul des éléments de matrice de l'opérateur d'évolution qui est effectué dans le cas où la puissance

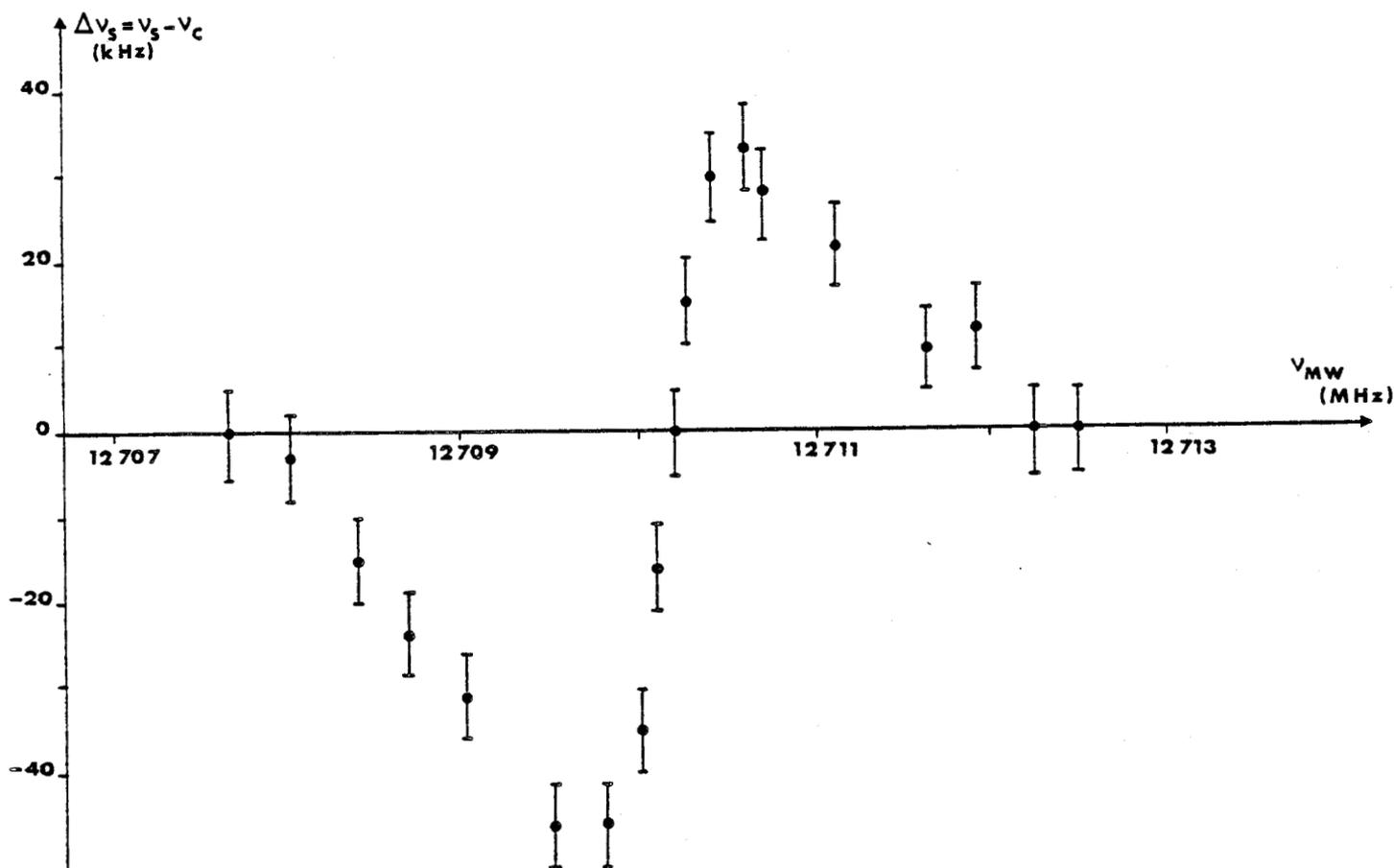


Figure II-7 : Variation de la fréquence d'émission en cascade (381 336 MHz) en fonction de la fréquence de la transition MW(c) :

$(6)17_{3,14} \rightarrow (6)17_{3,15}$ (12 710 MHz) ; pression du milieu amplificateur : 40 mTorr, puissance IR de pompe : 4W. La précision de mesure (10 kHz) est principalement limitée par les instabilités basse fréquence du laser de pompe.



de l'un des rayonnements (champ de sonde) est très faible devant l'autre (champ de pompe).

Compte tenu des faibles densités de puissance réalisées dans les lasers SMM, nous supposons que le rayonnement MW correspond au "champ de pompe" tandis que le rayonnement SMM représente le "champ de sonde". L'analogie est donc établie dans le cas limite d'un champ SMM de faible intensité. Cette approximation suppose un faible gain du milieu amplificateur et correspond expérimentalement à une faible puissance IR. Dans cette hypothèse, nous négligeons aussi toute corrélation avec le champ IR et considérons uniquement les trois niveaux couplés par les rayonnements SMM et MW*.

Le déplacement de fréquence, observé sur l'émission en cascade, est relatif à une disposition des niveaux d'énergie représentée par la figure II-1 où le rayonnement MW couple le niveau supérieur de la transition SMM**. En absence de champs SMM et MW, la population des niveaux $|v',3\rangle$ et $|a\rangle$ est négligeable devant celle du niveau $|v',2\rangle$ qui est peuplé par le rayonnement IR (cf Fig.II-1). De plus, on peut raisonnablement supposer que les niveaux $|v',3\rangle$ et $|a\rangle$, peuplés par collisions, ont la même population. Enfin, dans le cas d'un champ SMM résonnant avec la transition $|v',2\rangle \rightarrow |v',3\rangle$, la partie réelle de la susceptibilité diélectrique s'exprime par la relation :

$$\chi'(v_s) = \frac{2 N_2^0 \mu^2 \tau^4 \delta_0}{\hbar \epsilon_0 D} \left[\delta_0^2 (3 + \delta_0^2 \tau^2) - \delta^2 (3 + 3\delta^2 \tau^2 - 2\delta_0^2 \tau^2) \right] \quad (\text{II.7})$$

* En toute rigueur, ceci n'est justifié que dans le cas où l'on observe les effets de dispersion sur l'émission en cascade.

** Dans les travaux de B. MACKE, la disposition des champs est inverse : le champ de sonde couple les niveaux $|v',2\rangle$ et $|a\rangle$. Cependant, on montre facilement que les résultats obtenus sont applicables à notre disposition en effectuant la transformation : $\delta_0 \rightarrow -\delta_0$ dans l'expression de la susceptibilité.

$$\text{avec } D = (1 + 4\delta^2\tau^2) \left[1 + (\delta + \delta_0)^2\tau^2 \right] \left[1 + (\delta - \delta_0)^2\tau^2 \right]$$

Dans cette expression :

N_2^0 représente la population du niveau supérieur de la transition SMM

μ est le moment dipolaire de la transition MW

τ est le temps moyen entre deux collisions

$$\delta_0 = \frac{\omega_{MW} - \omega_{2a}}{2} \text{ rend compte de l'écart à la résonance du rayonnement MW}$$

$$\delta = \left[\delta_0^2 + \left(\frac{\mu E_{MW}}{2\hbar} \right)^2 \right]^{1/2}$$

En remplaçant la partie réelle de la susceptibilité diélectrique $\chi'(\nu_s)$ dans l'expression (II.6), on détermine alors la variation de la fréquence d'émission du laser induite par le rayonnement MW. La figure II-8 montre la variation obtenue sur l'émission en cascade du laser pour la transition MW (c). Nous avons pris comme valeur moyenne du moment dipolaire de la transition MW : $\mu = 0,5$ Debye et pour fréquence de Rabi : $\mu E_{MW} / \hbar = 1,2$ MHz. Le temps moyen entre deux collisions a été déterminé à partir du coefficient d'élargissement collisionnel habituel : $20 \text{ kHz mTorr}^{-1}$.

Pour ces valeurs, le déplacement maximal de la fréquence SMM est de 42,6 kHz, en bon accord avec les résultats expérimentaux. Notons de plus que l'allure générale et le sens de variation des courbes théorique (Fig. II.8) et expérimentale (Fig. II-7) sont comparables.

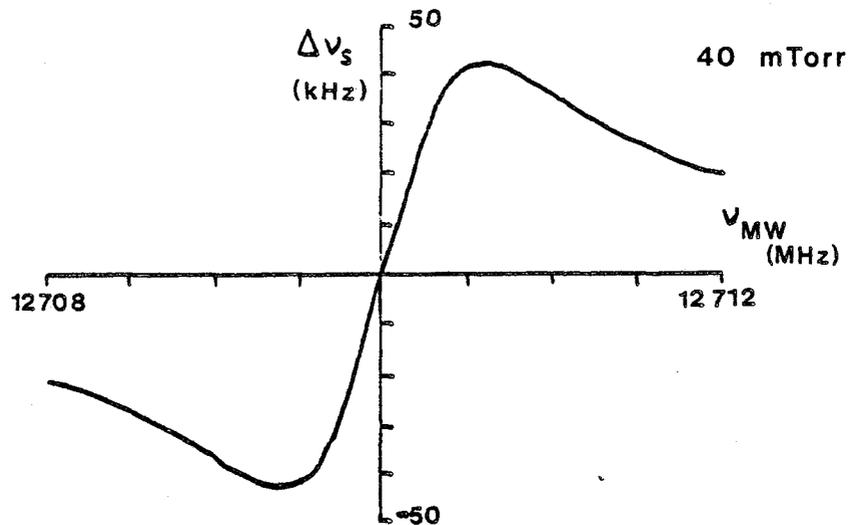


Figure II-8 : Variation théorique de la fréquence d'émission en cascade du laser induite par le rayonnement MW (transition (c)).

La forme simplifiée de $\chi'(v_s)$ employée ici, rend compte de l'ordre de grandeur et de l'évolution du déplacement de fréquence observé. Ceci confirme l'interprétation proposée des variations de la fréquence SMM qui résultent d'une modification de l'indice du milieu induite par double résonance.

II - 5) CONCLUSION

Les résultats obtenus au cours de ce chapitre montrent que l'utilisation d'un laser guide d'onde métallique est bien adaptée aux expériences de double résonance dans le domaine MW. L'introduction dans la cavité d'un rayonnement additionnel de puissance modérée permet de moduler efficacement la puissance de sortie du laser SMM (30%). D'un point de vue spectroscopique, les expériences de double résonance présentent l'intérêt de vérifier expérimentalement la valeur des fréquences de transitions déterminées par le calcul des niveaux d'énergie. La grande amplitude des signaux observés avec la cavité guide d'onde facilite ce genre d'étude et nous a permis de vérifier l'attribution d'une nouvelle transition de double résonance sur $H^{13}COOH^{(22)}$. Cette transition, réalisée dans l'état fondamental de vibration, entre les niveaux $(0) 29_{4,25} \leftarrow (0) 29_{4,26}$ pour une fréquence MW de 42 792,5 MHz augmente l'efficacité du pompage IR (raie 9R26 du laser à CO_2) qui connecte les niveaux $(0) 29_{4,25} \rightarrow (6) 29_{3,26}$. La fréquence MW mesurée coïncide exactement avec la fréquence prévue et confirme l'attribution de la raie SMM à 668 383 MHz $((6) 29_{3,26} \rightarrow (6) 28_{3,25})$.

En présence d'un champ MW additionnel, nous avons mis en évidence directement des variations de la fréquence d'émission du laser. Celles-ci sont en fait causées par la variation de l'indice du milieu due au rayonnement MW. Cette variation d'indice est aussi à l'origine d'une modification de la forme des signaux observés lorsque la cavité n'est pas accordée au centre du profil d'émission du laser.

Après ces études réalisées en régime stationnaire, nous nous intéressons dans le chapitre suivant au comportement transitoire du laser SMM.

CHAPITRE III

COMPORTEMENT TRANSITOIRE

DU LASER SMM

PRÉAMBULE

Dans un but de clarté et de synthèse, nous présentons ici l'ensemble des résultats sur les signaux transitoires dans un laser SMM. Au début de ce travail, plusieurs types de signaux avaient été observés mais leur origine n'avait pas toujours été clairement identifiée. Dans la thèse de J. WASCAT⁽⁸⁾, seule la montée aperiodique de l'oscillation était décrite théoriquement. L'interprétation proposée ici rend compte des différents régimes transitoires de montée et d'arrêt du laser SMM. Notre travail a été à la fois expérimental et théorique : il a en effet fallu reconsidérer un certain nombre d'expériences pour préciser les conditions d'apparition et les caractéristiques de chaque effet tout en développant et adaptant les théories du laser.

Dans ce chapitre, on étudie les régimes transitoires de montée en oscillation et d'arrêt d'un laser SMM. Ceux-ci sont produits par la commutation du rayonnement de pompe qui réalise l'inversion de population responsable de l'effet laser : en modulant par tout ou rien la puissance issue du laser CO_2 , on crée ou on supprime en un temps de l'ordre de la microseconde l'inversion de population des niveaux rotationnels connectés par l'émission SMM. Suivant les conditions expérimentales, on observe une grande variété de phénomènes transitoires. Certains sont analogues aux transitoires cohérents observés en spectroscopie micro-onde^(4,39) ou laser⁽³⁾. Dans d'autres cas, la puissance SMM émise présente pour des conditions expérimentales particulières divers comportements oscillatoires (amorti ou non) caractéristiques de différents modes de fonctionnement du laser.

Contrairement aux expériences de double résonance exposées dans le chapitre précédent, l'étude du comportement transitoire a été réalisée avec la cavité Pérot Fabry dont le fonctionnement "mono mode" facilite l'interprétation des effets observés.

Après avoir présenté dans une première partie le dispositif expérimental, nous rappelons au cours d'une seconde partie les résultats acquis au début de cette étude⁽⁸⁾ et relatifs à l'établissement de l'émission SMM après l'application de la puissance de pompe. Au cours de ces rappels, nous distinguerons deux régimes selon l'importance de la saturation SMM. Le comportement observé dans le régime de faible saturation a été interprété par J. WASCAT⁽⁸⁾ dans le cadre de la théorie semi-classique de LAMB^(40,41). En revanche, les conditions de validité de cette théorie ne sont plus vérifiées en présence d'une forte saturation SMM et afin d'interpréter les effets observés dans ce régime nous établirons, au cours d'une troisième partie, les équations d'évolution qui déterminent l'établissement de l'émission SMM. La quatrième partie est consacrée à l'étude du comportement oscillatoire du laser qui est entreprise d'une part en procédant à une analyse de la stabilité linéaire des équations établies dans la troisième partie et d'autre part à l'aide de la théorie de LAMB développée dans le cas où deux modes sont présents à l'intérieur de la cavité laser. La cinquième partie analyse le comportement transitoire de l'émission SMM à l'interruption

de la puissance de pompe. Enfin, nous terminons ce chapitre en présentant au cours d'une sixième partie les différents développements possibles de ce travail.

III - 1) MONTAGE EXPERIMENTAL

III-1-a) Modulation de la puissance de pompe

La commutation rapide de la puissance IR de pompe est réalisée par un modulateur acousto-optique commercial "ISOMET 1207 AO" dans lequel se propage une onde ultra-sonique qui crée des variations périodiques spatiales de l'indice de réfraction du cristal (Germanium) constituant le modulateur. L'onde est engendrée par un transducteur piezo-électrique excité par une tension radio-fréquence (RF) à 40 MHz.

Le cristal se comporte pour le rayonnement IR de pompe comme un réseau de diffraction dont le pas est égal à la demi-longueur d'onde acoustique dans le matériau. La modulation en créneau de la puissance RF permet de commuter par tout ou rien le faisceau IR de pompe dévié par le cristal du modulateur. Si l'onde acoustique est progressive, la fréquence du rayonnement émergent dans l'ordre n de diffraction est écartée de celle du rayonnement incident d'une quantité égale à $n v^*$ où v^* est la fréquence de l'onde acoustique⁽⁴²⁾.

Les caractéristiques du modulateur ont été présentées dans un travail antérieur⁽⁸⁾ et nous rappelons ici uniquement les conditions d'utilisation déterminées dans le but de commuter le plus rapidement possible le maximum de puissance IR.

Afin de commuter le maximum de puissance IR de pompe, le modulateur est orienté suivant l'incidence de Bragg⁽⁴²⁾ et les valeurs des puissances IR et RF sont choisies dans la limite de la puissance maximale admissible par le modulateur. Celle-ci est fixée à 15W pour l'ensemble de la puissance injectée (IR et RF) avec une limitation de la puissance radio-fréquence à 12W et de l'intensité IR à $50\text{W}/\text{cm}^2$.

Le temps de montée du modulateur est proportionnel à l'extension géométrique du faisceau IR de pompe à l'intérieur du barreau de germanium. Pour commuter le rayonnement IR en un minimum de temps, il est donc indispensable de minimiser le diamètre du faisceau IR à l'intérieur du modulateur. Compte tenu de la limitation sur la densité de puissance IR fixée à $50\text{W}/\text{cm}^2$, le diamètre de focalisation minimal ne doit pas être inférieur à 2,8 mm pour une puissance de pompe incidente de 3W. Expérimentalement, nous avons choisi un diamètre de focalisation minimal au centre du modulateur, voisin de 3 mm.

Dans ces conditions de fonctionnement, le modulateur acousto-optique permet de commuter par tout ou rien 30% de la puissance IR incidente en un temps inférieur à 300 ns.

Le montage expérimental assurant la commande du modulateur acousto-optique est représenté par la figure III-1; il comprend notamment une source radio-fréquence à 40 MHz dont l'amplitude est modulée en créneau au moyen d'un mélangeur équilibré (HP10514A) piloté par un générateur fournissant la séquence d'excitation souhaitée.

La puissance RF modulée est ensuite amplifiée pour atteindre les 12W correspondant à l'excitation optimale du modulateur. La puissance IR diffractée peut être réduite proportionnellement à la puissance RF sans intervention sur le laser CO_2 .

Un retard entre l'impulsion de commande et la commutation du faisceau IR de pompe a pu être évalué expérimentalement à $2\ \mu\text{s}$. Il est dû à la vitesse finie de propagation de l'onde acoustique dans le cristal de germanium utilisé ici ($5,5 \times 10^3\ \text{ms}^{-1}$ dans la direction de propagation de l'onde ⁽⁴³⁾).

III-1-b) Montage optique et traitement du signal SMM : montage optique

L'ensemble du montage expérimental est représenté par la figure III-2. La partie optique comprend deux lentilles en ZnSe disposées sur le trajet du faisceau de pompe incident et un miroir concave

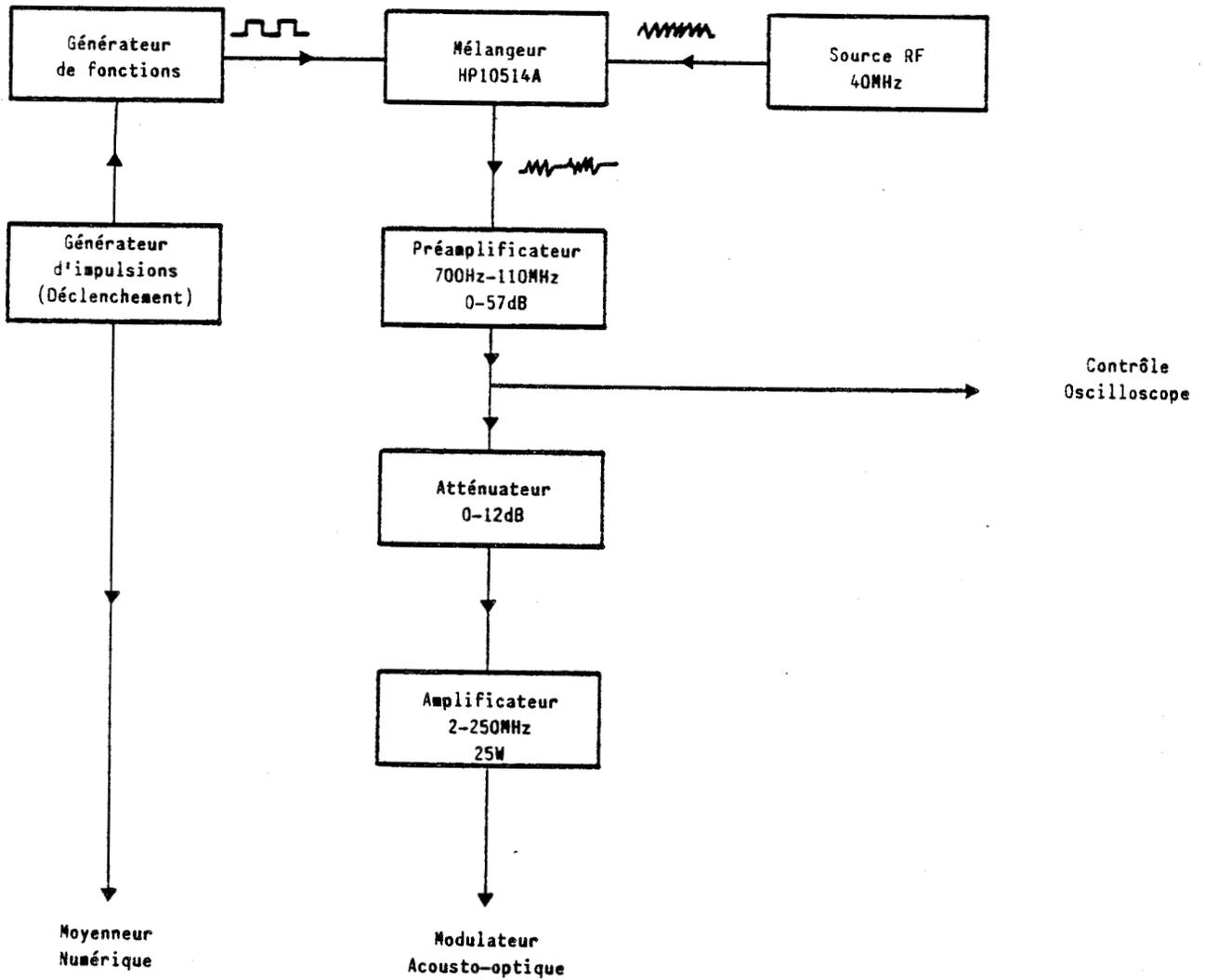


Figure III-1 : Dispositif de commande du modulateur acousto-optique.



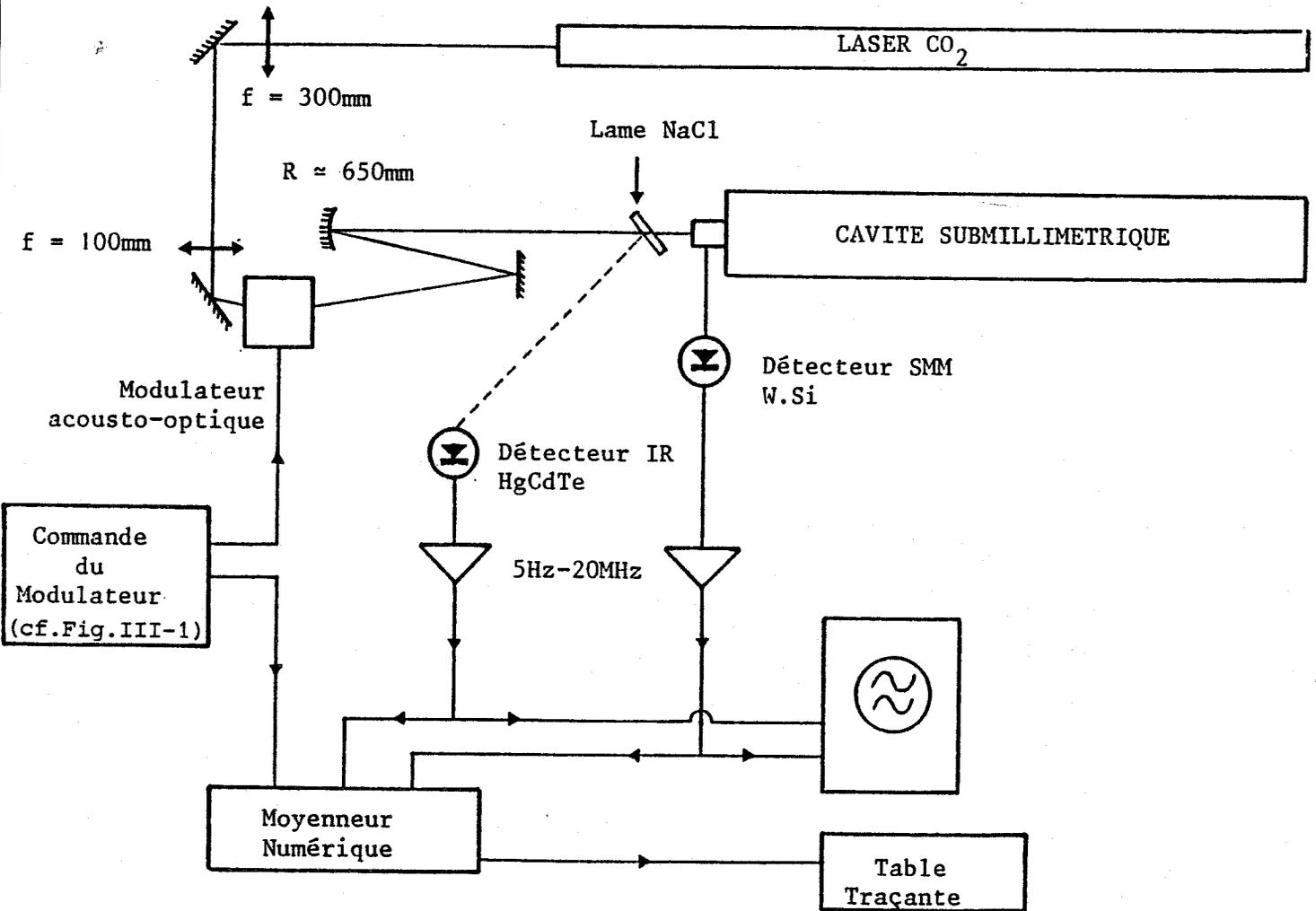


Figure III-2 : Montage expérimental

permettant d'introduire à l'intérieur de la cavité SMM le faisceau défléchi par le modulateur. Les positions longitudinales de ces différents éléments ont été déterminées pour obtenir d'une part un diamètre de focalisation minimal de l'ordre de 3 mm au centre du modulateur et d'autre part une puissance SMM émise maximale. Celle-ci est obtenue lorsque le faisceau défléchi, focalisé sur l'entrée de la cavité SMM, présente le meilleur recouvrement avec le mode du résonateur SMM.

Afin de surveiller la commutation du rayonnement de pompe, une lame de NaCl peut être insérée sur le trajet du faisceau dévié par le modulateur. Cette lame, inclinée à 45° par rapport à l'axe du faisceau, réfléchit une faible partie ($< 1\%$) de la puissance de pompe vers un détecteur HgCdTe. Le signal fourni par ce détecteur permet de déterminer l'instant de commutation de la puissance IR qui servira d'origine des temps.

Détection et traitement du signal SMM

La puissance émise par le laser SMM est détectée au moyen d'une diode à pointe dont les caractéristiques ont été rappelées au chapitre précédent (II-2-a). Le signal détecté est appliqué à l'entrée d'un amplificateur de bande passante 5 Hz - 20 MHz à 3 dB ; celle-ci a été choisie pour ne pas déformer l'allure de la montée en oscillation du laser SMM qui s'effectue en un temps de l'ordre de la microseconde. Après amplification, le signal peut être visualisé à l'oscilloscope ou transmis à un moyennneur numérique ATNE qui comporte 256 canaux et dispose de deux têtes d'échantillonnage de résolution 10 ns et 100 ns.

La fréquence d'échantillonnage est limitée à 3 kHz pour permettre d'une part le transfert des données à l'intérieur du moyennneur et d'autre part le retour à l'équilibre thermodynamique du milieu actif entre deux passages successifs.

Le signal moyennné peut être ensuite transcrit sur une table traçante ou transféré dans un fichier d'un ordinateur HP85⁽⁴⁴⁾ afin d'entreprendre immédiatement un traitement numérique des données.

III - 2) RESULTATS ACQUIS AU DEBUT DE CETTE ETUDE

Pour introduire quelques conventions et préciser les différents régimes observés lors de l'établissement de l'émission SMM, nous rappelons ici les résultats développés dans la thèse de J. WASCAT⁽⁸⁾ et qui ont été publiés par ailleurs⁽⁴⁵⁾.

Les premières études expérimentales, réalisées sur plusieurs émissions des molécules $H^{12}COOH$, $H^{13}COOH$ et D_2CO montrent que les effets observés sont toujours qualitativement les mêmes ce qui confirme la généralité de l'étude entreprise. Les enregistrements les plus significatifs ont été obtenus sur les émissions suivantes :

$H^{12}COOH$	742 μm	(9 R 40)
$H^{13}COOH$	788 μm	(9 P 12)

la raie de pompe correspondante du laser CO_2 est indiquée entre parenthèses.

Pour ces deux émissions, le déplacement de fréquence IR provoqué par le modulateur acousto-optique, permet de diminuer l'écart entre les transitions d'absorption et les raies de pompe correspondantes. De plus, les grandes longueurs d'onde de ces deux émissions facilitent l'utilisation du détecteur à pointe. Cette situation particulièrement favorable permet de les détecter avec un rapport signal sur bruit raisonnable même avec une faible puissance de pompe. A titre d'exemple, la raie à 742 μm de $H^{12}COOH$ a aisément été observée avec une puissance IR de 50 mW.

Les résultats expérimentaux

De façon générale, l'émission SMM apparaît avec un temps de latence compris entre 5 et 50 μs après l'application du rayonnement IR de pompe. Le temps de montée de la puissance, de l'ordre de quelques microsecondes (1 à 7 μs) dépend des conditions de fonctionnement choisies. Notons d'ores et déjà que pour certaines conditions expérimentales qui seront précisées dans la suite, le régime stationnaire n'est pas atteint et la puissance émise par le laser présente un comportement oscillatoire non amorti.

Afin de préciser le mode d'établissement de l'émission SMM, il est intéressant d'introduire quelques notions qui seront utiles au cours de ce chapitre (cf Figure III-3) :

- Nous appellerons délai (T_D) : l'intervalle de temps séparant l'instant initial de la commutation du rayonnement IR et l'instant où la puissance émise par le laser atteint 10% de sa valeur en régime stationnaire ($I_S(\infty)$).

- L'intervalle de temps séparant les deux instants où la puissance émise vaut respectivement 10% et 90% de sa valeur en régime stationnaire sera défini comme le temps de montée (T_M) de l'émission SMM. Lors de l'interruption de la puissance de pompe, nous définirons de façon analogue le temps d'arrêt (T_A) de l'émission SMM qui correspond au temps écoulé entre l'interruption de la pompe et l'instant où la puissance émise est réduite à 10% de sa valeur en régime stationnaire.

Dans le cas particulier où le laser présente un comportement oscillatoire non amorti, seul le délai sera défini en remplaçant la valeur atteinte en régime stationnaire par la valeur moyenne de la puissance émise dans ce régime oscillatoire.

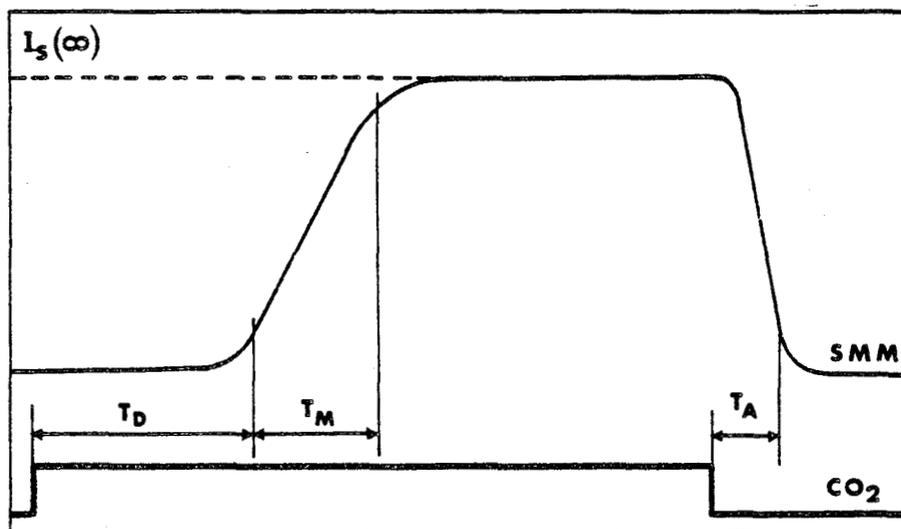


Figure III-3 : Allure de l'évolution temporelle de l'émission SMM (régime de faible saturation).

La montée en oscillation du laser SMM a été étudiée en fonction de trois paramètres expérimentaux : la puissance IR de pompe, la fréquence SMM et la pression du milieu amplificateur. Les études réalisées pour différentes valeurs de ces paramètres montrent que l'établissement de l'oscillation laser est principalement déterminé par le gain du milieu amplificateur.

Pour des faibles puissances IR de pompe, la puissance SMM émise reste faible et on observe un délai très important qui peut atteindre 50 μ s associé à un temps de montée supérieur à 5 μ s. L'augmentation de la puissance IR provoque une diminution simultanée de ce délai et du temps de montée. Remarquons qu'à basse puissance de pompe, on réalise une faible inversion de population entre les deux niveaux connectés par l'émission SMM et les valeurs importantes du délai et du temps de montée résultent simplement du faible gain obtenu dans ce cas.

La modification de la fréquence SMM provoque des effets similaires sur le délai et le temps de montée. Lorsque la fréquence SMM est écartée de la fréquence centrale du profil d'émission du laser, le délai et le temps de montée augmentent pour atteindre des valeurs comparables à celles obtenues en diminuant la puissance IR de pompe. De plus, le délai et le temps de montée présentent la même évolution de part et d'autre de la fréquence centrale d'émission.

Examinons à présent les enregistrements de la figure III-4 qui représentent la montée en oscillation du laser SMM pour différentes pressions comprises entre 3 et 20 mTorr. Pour des pressions croissantes et supérieures à 10 mTorr, l'évolution du délai et du temps de montée est comparable à celle obtenue en diminuant la puissance IR ou en s'écartant de la fréquence centrale d'émission du laser. Pour les pressions les plus élevées (courbes A et B), les valeurs importantes du délai et du temps de montée caractérisent le faible gain de milieu amplificateur ainsi que nous l'avons précisé ci-dessus. A basse pression (courbes D, E, F), l'établissement de l'émission laser présente une suroscillation avant d'atteindre le régime stationnaire et le temps de montée est comparable au temps de relaxation rotationnelle ($\gamma^{-1} \approx 2 \mu$ s à 5 mTorr). Précisons que le faible temps de montée ainsi que la suroscillation sont toujours observés.

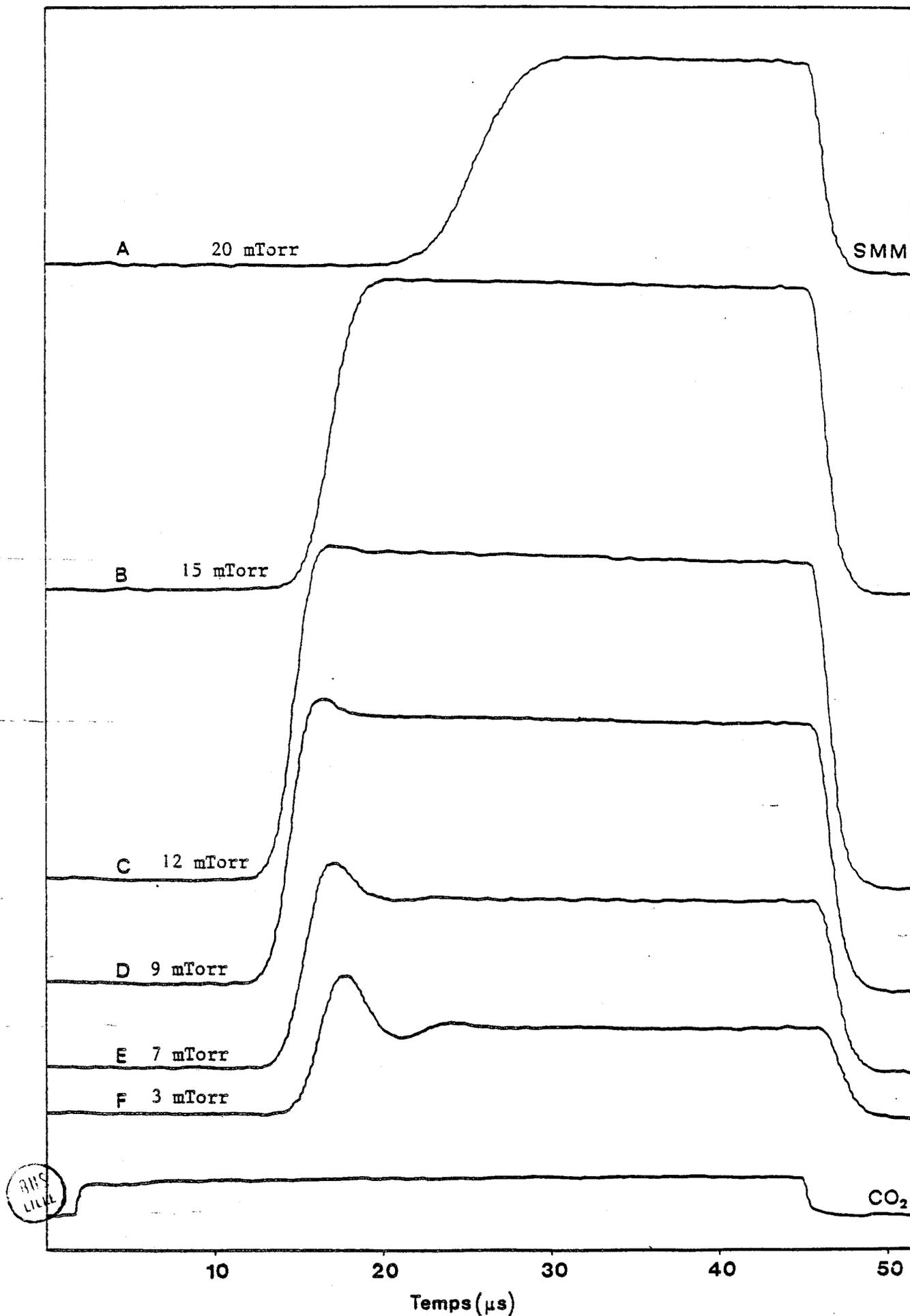


Figure III-4 : Evolution temporelle de l'émission SMM pour différentes valeurs de la pression du milieu amplificateur. Emission à $788 \mu\text{m}$ de H^{13}COOH (9P12), puissance IR de pompe : 0,8 W.

pour des valeurs de pression inférieures à 10 mTorr et de puissance de pompe supérieures à 500 mW ; ceci montre l'importance des effets de saturation IR et SMM. Dans ces conditions expérimentales, l'établissement de l'oscillation laser dépend donc fortement de la saturation du gain du milieu amplificateur.

L'analyse des différents enregistrements de la figure III-4 permet donc de distinguer deux régimes :

- le premier, obtenu pour des pressions supérieures à 10 mTorr correspond au régime de faible saturation où l'émission laser s'établit de façon aperiodique ; nous en précisons les caractéristiques ci-dessus.

Le second apparaît à basse pression et à forte puissance de pompe ; l'établissement de l'émission SMM présente alors une suroscillation avant d'atteindre sa valeur stationnaire. Pour ces conditions de forte saturation, le couplage entre le champ SMM et le milieu amplificateur est fortement non linéaire et dans la suite de ce chapitre nous qualifierons ce régime de non linéaire ; son étude fait l'objet du paragraphe III.3.

Régime de faible saturation

La montée aperiodique de l'oscillation laser a été interprétée par J. WASCAT⁽⁸⁾ dans le cadre de la théorie semi-classique de LAMB (40,41) en élargissement homogène dominant. Rappelons brièvement la démarche suivie ainsi que les approximations faites.

La théorie semi-classique de LAMB est basée sur la détermination de la polarisation induite dans le milieu amplificateur par le champ existant dans la cavité ; le milieu amplificateur étant représenté par un ensemble de systèmes à deux niveaux d'énergie.

Le calcul de la polarisation est effectué au 3ème ordre par rapport au champ dans le formalisme de la matrice densité. L'intégration de l'équation de mouvement de la matrice densité est entreprise en supposant que les variations de l'inversion de population et de l'amplitude du champ sont faibles durant un intervalle de temps γ^{-1} . En considérant la polarisation ainsi déterminée comme un terme source dans les équations

de Maxwell, on obtient alors l'équation d'évolution de l'intensité SMM émise :

$$\dot{I}_S = 2I_S (\alpha - \beta I_S) \quad (\text{III.1})$$

où α est le gain linéaire total comprenant les pertes de la cavité
 β représente le coefficient d'autosaturation du champ
 I_S est l'intensité réduite (sans dimension)

$$\alpha = L(\omega_{23} - \omega_S) F_1 - \frac{\omega_S}{2Q} \quad \beta = L^2(\omega_{23} - \omega_S) F_3$$

$$I_S = \frac{1}{2} \frac{\mu_r^2 E_S^2}{\hbar^2 \gamma^2}$$

$$\text{avec } F_1 = \frac{\omega_S}{2} \frac{\mu_r^2 \bar{N}}{\hbar \epsilon_0 \gamma} \quad \text{et} \quad F_3 = \frac{3}{2} F_1$$

$$L(\omega_{23} - \omega_S) = \gamma^2 \left[\gamma^2 + (\omega_{23} - \omega_S)^2 \right]^{-1}$$

Dans ces expressions, μ_r est le moment dipolaire de la transition SMM, ω_S est la pulsation du champ émis (E_S), \bar{N} est la densité moyenne d'inversion de population réalisée en absence de champ SMM. Q est le coefficient de qualité de la cavité à la pulsation ω_{23} et $L(\omega_{23} - \omega_S)$ représente la forme lorentzienne normalisée à l'unité pour la pulsation ω_{23} . Rappelons que le niveau supérieur (inférieur) de la transition SMM est noté 2 (3)*.

L'intégration de l'équation (III.1) conduit à l'expression de la montée en oscillation du laser en régime de faible saturation :

* Dans la théorie de Lamb, les expressions sont établies en considérant que les taux de relaxation des cohérences et des populations sont différents. Afin de simplifier la comparaison avec les expressions développées dans cette partie, nous avons ici supposé que la relaxation peut être décrite par un taux unique γ .

$$I_S = \frac{\alpha [I_0 / (\alpha - \beta I_0)] \exp 2\alpha t}{1 + \beta [I_0 / (\alpha - \beta I_0)] \exp 2\alpha t} \quad (\text{III.2})$$

où $I_0 = I(0)$ est la valeur de l'intensité initiale qui, dans le domaine SMM, provient essentiellement du rayonnement thermique⁽⁸⁾. Aux faibles intensités, l'expression (III.2) se simplifie et on montre que initialement la montée en oscillation du laser est exponentielle :

$$I_S(t) = I_0 \exp(2\alpha t).$$

Comme il a été rappelé ci-dessus, dans le régime de faible saturation ($I_S \ll 1$), le temps de montée de l'émission SMM est grand devant le temps de relaxation rotationnel γ^{-1} . Les variations du champ sont donc faibles pendant un intervalle de temps γ^{-1} . Il en est de même des variations de l'inversion de population qui dépendent notamment du taux de transition induit par le champ SMM. Les conditions de validité de la théorie de LAMB sont donc vérifiées et l'expression (III.2) peut être comparée aux résultats expérimentaux.

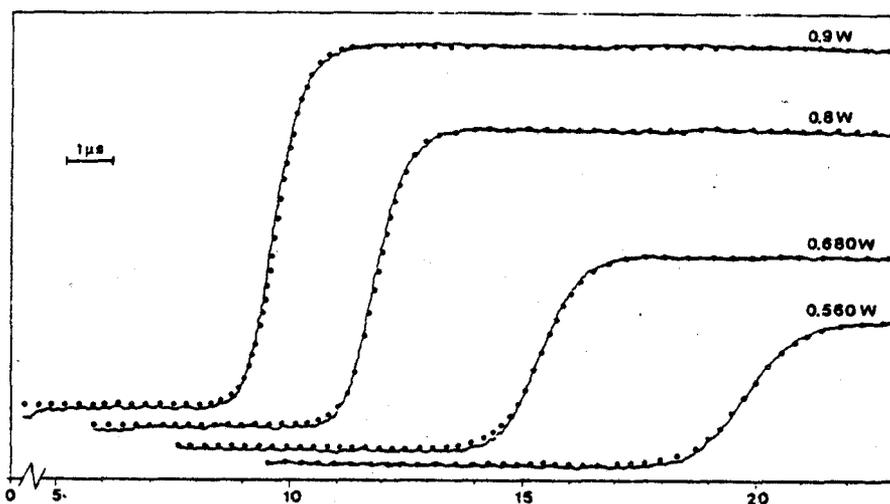


Figure III-5 : Comparaison théorie expérience de l'établissement de l'émission SMM pour différentes valeurs de la puissance de pompe. Les points représentent des valeurs théoriques calculées à partir de l'expression III.2 ; les enregistrements expérimentaux (lignes continues) ont été obtenus pour une pression du milieu amplificateur de 20 mTorr et sont relatifs à l'émission à 742 μm de HCOH (9R40)

La figure III-5 montre le bon accord entre la théorie et l'expérience obtenu pour différentes valeurs de la puissance IR de pompe, la pression du milieu amplificateur étant de 20 mTorr. La forme théorique a été adaptée après ajustement du gain linéaire α et d'un facteur d'échelle qui est le même pour tous les enregistrements. Les valeurs du gain α ainsi déterminées varient linéairement avec la puissance de pompe en accord avec l'hypothèse de faible saturation.

Les enregistrements obtenus à basse pression n'ont pas été interprétés par J. WASCAT⁽⁸⁾, ils nous ont amené à définir un régime non linéaire où l'établissement de l'émission laser présente une sur-oscillation avant d'atteindre sa valeur stationnaire. Ce comportement n'est pas décrit par la théorie semi-classique au 3ème ordre et nécessite une nouvelle approche du problème, qui fait l'objet de la partie suivante.

III - 3) MODELE A DEUX NIVEAUX D'ENERGIE

En régime non linéaire, le temps de montée de l'oscillation laser est du même ordre de grandeur que le temps de relaxation rotationnelle (γ^{-1}) et les conditions de validité de la théorie au 3ème ordre de LAMB ne sont plus vérifiées. Nous nous proposons au cours de cette troisième partie d'établir un modèle applicable au régime non linéaire en utilisant les bases de la théorie de LAMB en champ fort⁽⁴⁶⁾.

Nous définirons d'abord les hypothèses de départ du modèle présenté, ceci nous conduira au cours d'une première approche du problème à un modèle à deux niveaux d'énergie. Nous établirons ensuite les équations d'auto-cohérence du champ ainsi que les équations d'évolution de la polarisation locale. A partir de ces deux ensembles d'équations, nous retrouverons les résultats obtenus dans le cas limite de la faible saturation. Dans le cas général, nous aborderons les problèmes de la théorie du laser en champ fort et en régime transitoire et nous présenterons une résolution numérique du problème.

La grande variété des phénomènes observés dans le domaine des basses pressions (inférieures à 10 mTorr), nous conduira ensuite (III-4)

à une étude de stabilité des équations établies dans cette partie ; nous précisons alors le comportement oscillatoire non amorti qui a été simplement mentionné dans la partie III-2.

III-3-a) Etablissement du modèle

La description des différents mécanismes intervenant dans le laser SMM optiquement pompé nécessite de prendre en compte trois niveaux d'énergie au moins et deux rayonnements : IR et SMM. Nous avons rappelé, dans le premier chapitre (I-1) de ce mémoire le principe de fonctionnement du laser SMM établi suivant le modèle de J.R. TUCKER⁽⁶⁾ (cf Fig. III-6). Sur cette base, nous allons définir différentes hypothèses afin de décrire l'établissement de l'émission laser.

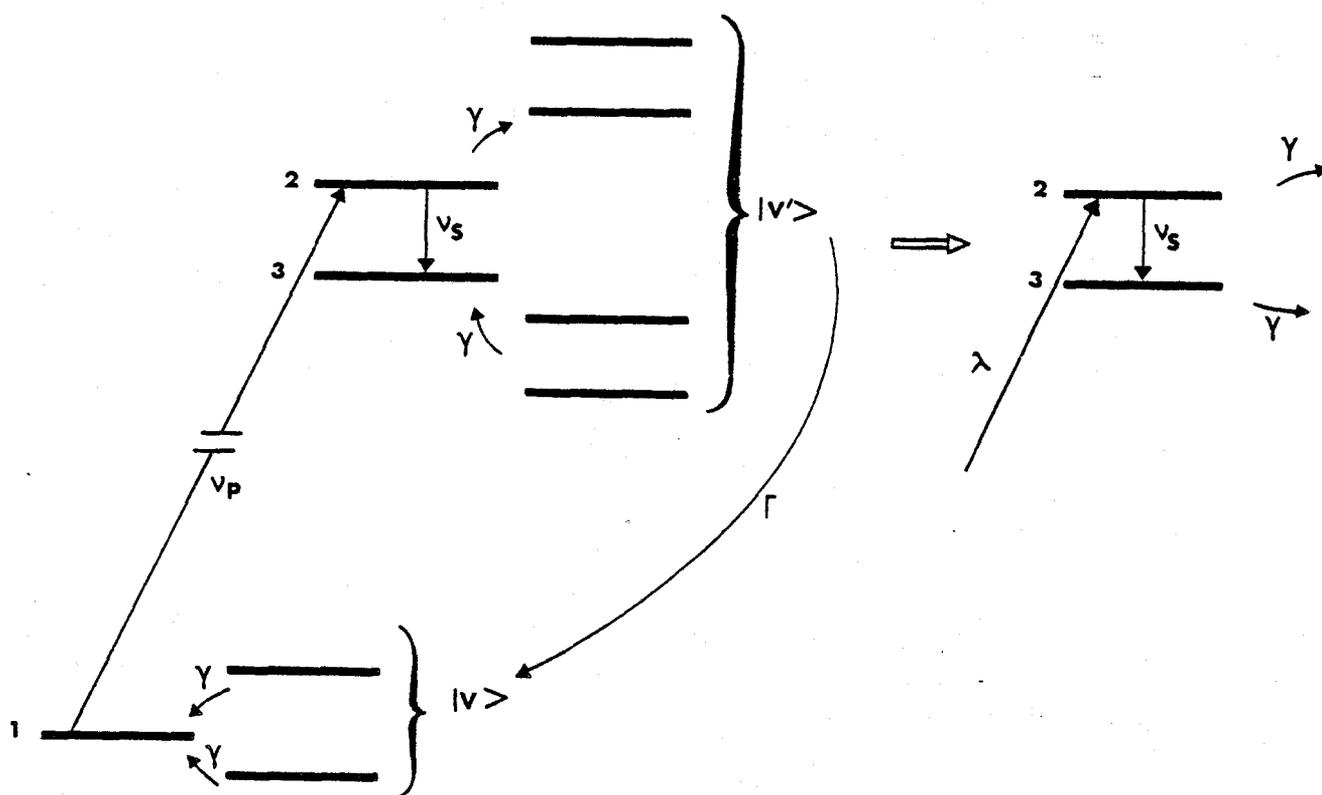


Figure III-6 : Passage à une description de l'établissement de l'émission laser dans un modèle à deux niveaux d'énergie.

Description du milieu amplificateur

Nous considérons ici, que les différents niveaux d'énergie ne sont pas dégénérés. A l'équilibre thermodynamique et en absence de rayonnement, on peut négliger la population du niveau de vibration excité devant celle du niveau de vibration fondamental.

L'établissement de l'émission laser étant réalisé en des temps de l'ordre de la microseconde, nous pouvons négliger la relaxation vibrationnelle (Γ) qui s'effectue à l'échelle de la milliseconde. Le phénomène d'engorgement vibrationnel (cf I-1) qui limite l'inversion de population réalisée entre les deux niveaux SMM apparaît ainsi négligeable à notre échelle de temps. En régime transitoire, le rendement du laser SMM est donc supérieur à celui obtenu en régime d'équilibre après quelques millisecondes^{*}.

Nous adoptons un modèle simple des collisions en considérant qu'elles provoquent toutes un changement d'état quantique (approximation des collisions fortes). On peut alors représenter la relaxation des cohérences et des populations par un temps caractéristique unique : γ^{-1} . Cette approximation pourrait facilement être levée mais elle permet de simplifier les expressions obtenues et de décrire les effets observés de façon satisfaisante.

Dans cette première approche du problème, nous supposons que les deux transitions : IR et SMM ne sont pas couplées et nous négligeons donc les effets de cohérence à deux photons : IR et SMM. Le milieu amplificateur est alors décrit par un ensemble de systèmes composés uniquement des deux niveaux SMM (2 et 3) et le rayonnement IR est représenté par un taux de pompage : λ (cf. Fig.III-6). Sur la base de ce modèle à deux niveaux d'énergie, on néglige aussi les phénomènes transitoires liés à la commutation rapide de la puissance IR de pompe. En fait, les

* En toute rigueur, le régime stationnaire défini au cours de ce chapitre doit être interprété comme un régime quasi-stationnaire qui évolue vers un équilibre en quelques millisecondes (1 à 5 ms).

collisions entre molécules, l'effet Doppler et l'inhomogénéité du faisceau IR à l'intérieur de la cavité SMM provoquent un amortissement rapide de ces effets transitoires^(39,47) et ceux-ci apparaissent négligeables au moment de la montée en oscillation du laser qui est toujours observée après un délai supérieur à 5 μ s. Notons dès à présent qu'il n'en sera pas de même lors de l'interruption de la puissance de pompe.

En toute rigueur, le modèle à deux niveaux d'énergie n'est pas justifié lorsque la saturation IR est importante car les transitions IR et SMM sont alors couplées. Cependant, les phénomènes transitoires IR étant fortement amortis, on peut admettre que les effets observés lors de l'établissement de l'émission laser sont principalement dus à la saturation SMM et nous verrons dans cette partie que le modèle à deux niveaux permet une bonne description de la montée en oscillation du laser SMM.

Enfin, le modèle à deux niveaux représente une première étape dans l'analyse du comportement transitoire et nous le généraliserons au modèle à trois niveaux dans une partie suivante (III-5). Cette façon de procéder présente aussi l'avantage de mettre en évidence les effets dus à la présence des deux rayonnements IR et SMM parmi la grande variété des phénomènes observés en régime non linéaire.

Description des champs et de la polarisation SMM

Nous négligeons la dépendance transversale du champ IR de pompe et considérons simplement que l'amplitude du champ est une fonction de la coordonnée axiale z et du temps t . Les variations spatiales sont supposées faibles sur une longueur d'onde SMM et peuvent éventuellement rendre compte de l'atténuation et de l'absorption du rayonnement IR de pompe. De même, nous supposons que l'amplitude du champ IR varie lentement au cours du temps.

Notons que, dans le domaine des basses pressions, la transition SMM présente un élargissement Doppler dominant ; typiquement à 2 mTorr et pour les deux émissions étudiées, le rapport des largeurs Doppler et homogène est de l'ordre de 8. Cependant, le pompage IR est sélectif en vitesse (I-1) et l'effet Doppler à la fréquence SMM est relatif aux classes

de vitesse pompées par le laser IR. Dans le cas particulier où le rayonnement IR est résonnant avec la transition rovibrationnelle $1 \rightarrow 2$, seule une bande étroite de vitesses centrée autour de la vitesse nulle contribue à l'émission SMM et l'effet Doppler peut être négligé.

Au cours de cette partie, nous nous limitons à ce cas particulier ; la partie suivante présentera les effets observés lorsque le rayonnement IR n'est pas résonnant avec la transition $1 \rightarrow 2$.

FOX et LI⁽⁴⁸⁾ ont montré que pour les modes de symétrie élevés, le champ varie lentement dans un plan de section droite du faisceau*, en approximant le champ SMM par une onde plane, on néglige l'amortissement des effets transitoires dû à l'inhomogénéité du champ dans un mode d'extension transversale finie^(39,47). Pour le résonateur Pérot Fabry, le champ SMM est polarisé linéairement dans une direction fonction de celle du rayonnement IR de pompe (I-5) et ceci nous permet d'omettre le caractère vectoriel du champ et de la polarisation. Cette simplification n'est plus justifiée dans le cas de la cavité guide d'onde métallique.

Suivant la méthode développée par LAMB⁽⁴⁰⁾, nous pouvons séparer les dépendances spatiale et temporelle du champ SMM par un développement en fonction des modes propres de la cavité passive :

$$\mathbf{E}_S(z,t) = \sum_n \mathbf{E}_{S,n}(t) \sin K_n z \quad (\text{III.3})$$

avec :

$$K_n = \frac{n\pi}{L} = \frac{\Omega_n}{c}$$

où L représente la longueur de la cavité laser, n est un entier de l'ordre de 10^3 , Ω_n est la pulsation du mode n et K_n le nombre d'onde associé à l'onde plane de pulsation Ω_n . Au cours de ce chapitre, le champ et la polarisation à la fréquence SMM (IR) seront précisés par un indice $s(p)$.

** En fait, il faudrait distinguer la variation transversale du champ SMM qui est toujours de 100 % et la variation du champ vu par la molécule pendant un vol libre qui peut suivant la pression et le mode considéré, être beaucoup plus faible.*

Les composantes $E_{S,n}(t)$ s'expriment simplement lorsque l'intervalle de fréquence séparant deux modes successifs est supérieur à la largeur de résonance de la cavité ($\sim \omega_n/Q$). Notons que, pour notre résonateur Pérot Fabry, les modes d'ordre élevé sont peu nombreux et cette condition est généralement vérifiée. On peut alors écrire :

$$E_{S,n}(t) = E_{S,n}(t) \cos(\omega_n t + \varphi_n(t)) \quad (\text{III.4})$$

Dans cette expression, la phase est supposée dépendre du temps afin de rendre compte éventuellement d'un déplacement de la fréquence d'émission pendant l'établissement de l'oscillation laser. A un instant donné, la pulsation de la composante $E_{S,n}(t)$ est prise égale à $\omega_n + \dot{\varphi}_n$ où $\dot{\varphi}_n = \frac{d}{dt} \varphi_n$.

Précisons qu'en absence de milieu actif, la pulsation du mode n est fixée à Ω_n par la longueur de la cavité. Tandis qu'en présence de milieu actif, la polarisation induite par le champ modifie l'indice du gaz et la fréquence d'émission du laser peut alors être différente de celle de la cavité passive. La pulsation $\omega_n + \dot{\varphi}_n$ reste cependant toujours très proche de Ω_n car les effets de dispersion sont très faibles (cf : II-4-c).

Le champ SMM $E_S(z,t)$ induit une polarisation $P_S(z,t)$ que nous pouvons développer en fonction des modes propres de la cavité passive :

$$P_S(z,t) = \sum_n P_{S,n}(t) \sin K_n z \quad (\text{III.5})$$

avec

$$P_{S,n}(t) = P_{S,n}(t) \cos(\omega_n t + \psi_n(t)) \quad (\text{III.6})$$

on écrira, en notation complexe :

$$E_S(z,t) = \frac{1}{2} \sum_n E_{S,n}(t) e^{i(\omega_n t + \varphi_n(t))} \sin K_n z + \text{complexe conjugué} \quad (\text{III.3'})$$

$$P_S(z,t) = \frac{1}{2} \sum_n P_{S,n}(t) e^{i(\omega_n t + \varphi_n(t))} \sin K_n z + \text{complexe conjugué} \quad (\text{III.5'})$$

où $P_{S,n}(t)$ est une quantité complexe :

$$P_{S,n}(t) = C_{S,n}(t) + i S_{S,n}(t) \quad (\text{III.7})$$

Dans cette expression, la partie réelle $C_{S,n}(t)$ qui est en phase avec le champ $E_{S,n}(t)$ correspond à la dispersion du milieu amplificateur alors que la partie imaginaire $S_{S,n}(t)$ est en quadrature avec le champ et donne lieu au gain du milieu amplificateur.

III-3-b) Equations d'auto-cohérence

Les équations d'auto-cohérence sont établies en considérant la polarisation comme un terme source dans les équations de Maxwell. Dans le modèle d'onde plane supposé ici, on obtient :

$$\text{rot rot } E_S(z,t) + \mu_0 \sigma \frac{\partial E_S(z,t)}{\partial t} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 E_S(z,t)}{\partial t^2} = - \mu_0 \frac{\partial^2 P_S(z,t)}{\partial t^2} \quad (\text{III.8})$$

$$\text{avec rot rot } E_S(z,t) = - \frac{\partial^2 E_S(z,t)}{\partial z^2}$$

La conductivité σ a été introduite afin de tenir compte des pertes de la cavité. Pour le mode n , elles sont reliées au coefficient de qualité Q_n par la relation :

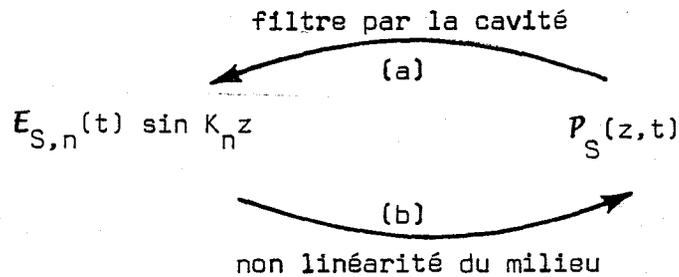
$$\sigma_n = \frac{\epsilon_0 \omega_n}{Q_n} \quad (\text{III.9})$$

Avant de remplacer dans l'équation (III.8), $E_S(z,t)$ et $P_S(z,t)$ par leurs définitions (III.3') et (III.5'), nous allons préciser

le couplage qui relie le champ et la polarisation dans le cas particulier où seul le mode n est présent dans la cavité. Cette hypothèse conduit à projeter l'équation (III.8) sur le mode n considéré et nous allons discuter de la signification physique de cette projection.

Le fonctionnement monomode revient à considérer que seule la composante $E_{S,n}(t) \sin K_n z$ est présente dans la cavité et contribue à la puissance émise par le laser ; les pertes de la cavité étant supposées infinies pour les autres modes.

A l'intérieur de la cavité laser, la polarisation réagit sur le champ et vice versa. L'étroite liaison entre ces deux quantités peut se schématiser ainsi :



La branche supérieure (a) où la polarisation apparaît comme un terme source, représente la réaction du milieu amplificateur sur le champ qui est établie dans l'équation (III.8). Tandis que la branche inférieure (b) où le champ induit la polarisation dans le milieu amplificateur sera décrite dans le paragraphe suivant à l'aide du formalisme de la matrice densité.

Remarquons que les deux couplages : (a) et (b) ne sont pas équivalents. En effet, le pouvoir sélectif du résonateur qui est schématisé ici par un filtre, limite la contribution de la polarisation à sa composante n . Mathématiquement, ceci correspond à la projection de l'équation (III.8) sur le mode n . En revanche, la non linéarité du couplage entre la polarisation et le champ (branche (b)) qui est due aux effets de saturation dans le milieu laser engendre des composantes spatiales de la polarisation autres que celle du champ en $\sin K_n z$.

Il apparaît ainsi que même en fonctionnement monomode et plus particulièrement en régime non linéaire, la polarisation $\mathbf{P}_S(z,t)$ peut comporter des harmoniques spatiaux autres que $\sin K_n z$. Le lien entre la polarisation et le champ apparaît dans la relation suivante :

$$\mathbf{P}_S(z,t) = \epsilon_0 \chi_S \mathbf{E}_{S,n}(t) \sin K_n z \quad (\text{III.10})$$

où la susceptibilité diélectrique χ_S est non linéaire par rapport au champ $\mathbf{E}_{S,n}(t) \sin K_n z$.

En considérant que seul le mode n est présent dans la cavité, nous projetons donc maintenant l'équation (III.8) sur le mode n considéré. Cette projection s'effectue en tenant compte de l'orthogonalité des modes qui s'exprime par la relation :

$$\int_0^L \sin K_n z \sin K_m z dz = N \delta_{nm} \quad (\text{III.11})$$

où $N = \frac{L}{2}$ est un facteur de normalisation.

On obtient alors :

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_{S,n}(t)}{\partial t^2} + \frac{\omega_n}{Q_n} \frac{\partial \mathbf{E}_{S,n}(t)}{\partial t} + \Omega_n^2 \mathbf{E}_{S,n}(t) = - \frac{1}{\epsilon_0} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{S,n}(t)}{\partial t^2} \quad (\text{III.12})$$

où nous avons introduit d'après (III.9), le coefficient de qualité Q_n . De plus, la projection $\mathbf{P}_{S,n}(t)$ de la polarisation sur le mode n est exprimée en fonction de la polarisation $\mathbf{P}_S(z,t)$ par la relation :

$$\mathbf{P}_{S,n}(t) = \frac{1}{N} \int_0^L \mathbf{P}_S(z,t) \sin K_n z dz \quad (\text{III.13})$$

Notons que cette relation relie une quantité "globale" : $\mathbf{P}_{S,n}(t)$ à une grandeur locale $\mathbf{P}_S(z,t)$. Par la suite nous calculerons, à l'aide du formalisme de la matrice densité, la polarisation induite dans le milieu amplificateur et la relation III.13 nous permettra de relier cette grandeur locale à la polarisation "globale" qui apparaît dans la projection des équations de Maxwell.

En considérant que d'une part, les amplitudes $E_{S,n}(t)$, $P_{S,n}(t)$ et la phase $\varphi_n(t)$ varient peu pendant une période SMM et que d'autre part, la polarisation et les pertes de la cavité restent faibles, nous pouvons négliger les termes d'ordre 2 dans l'équation (III.12) (approximation de l'amplitude et de la phase lentement variables). De plus, la pulsation $(\omega_n + \dot{\varphi}_n)$ du champ émis étant voisine de celle du mode n , nous pouvons considérer que :

$$\Omega_n^2 - (\omega_n + \dot{\varphi}_n)^2 \approx 2\omega_n (\Omega_n - \omega_n - \dot{\varphi}_n)$$

On obtient alors les équations d'auto-cohérence où l'on a fait apparaître les parties réelles $C_{S,n}(t)$ et imaginaire $S_{S,n}(t)$ de la composante n de la polarisation :

$$\dot{E}_{S,n}(t) + \frac{\omega_n}{2Q_n} E_{S,n}(t) = \frac{1}{2} \frac{\omega_n}{\epsilon_0} S_{S,n}(t) \quad (\text{III.14})$$

$$(\Omega_n - \omega_n - \dot{\varphi}_n(t)) E_{S,n}(t) = \frac{1}{2} \frac{\omega_n}{\epsilon_0} C_{S,n}(t) \quad (\text{III.15})$$

L'équation (III.14) exprime l'évolution de l'amplitude du champ en fonction du gain du milieu amplificateur moins les pertes de la cavité. Le gain est représenté comme un terme source par la partie imaginaire de la polarisation tandis que les pertes de la cavité apparaissent comme un terme d'amortissement dont la constante de temps $2Q_n/\omega_n$ caractérise la durée de vie moyenne des photons à l'intérieur de la cavité SMM. En régime stationnaire, on retrouve la condition d'oscillation classique qui se traduit par l'égalité du gain et des pertes.

L'équation (III.15) montre que la pulsation du champ émis $(\omega_n + \dot{\varphi}_n)$ peut être différente de celle fixée par la cavité passive (Ω_n) . Ceci est dû à la dispersion du milieu amplificateur qui apparaît ici dans la partie réelle de la polarisation. A l'état stationnaire, on retrouve la relation (II.6) introduite au cours des études de double résonance en remarquant que $C_{S,n} = \epsilon_0 \chi'_S E_{S,n}$.

III-3-c) Etablissement des équations de mouvement de la polarisation locale

Au cours de ce paragraphe, nous établissons les équations d'évolution de la polarisation locale $\mathbf{P}_S(z,t)$ dans le formalisme de la matrice densité. Le lien avec les quantités globales $C_{S,n}(t)$ et $S_{S,n}(t)$ qui interviennent dans les équations d'auto-cohérence (III.14) et (III.15) sera ensuite établi d'après la relation intégrale (III.13).

Considérons les molécules excitées à l'instant t_0 et à l'abscisse z par le pompage IR supposé résonnant avec la transition rovibrationnelle $1 \rightarrow 2$. Ces molécules sont soumises au rayonnement SMM présent dans la cavité et leurs comportements à l'instant t et à l'abscisse z peut être décrit par l'équation d'évolution de la matrice densité $\rho(z,t,t_0)$.

La polarisation locale $\mathbf{P}_S(z,t)$ est donnée par la contribution de toutes les molécules compte tenu de l'instant t_0 d'excitation, soit :

$$\mathbf{P}_S(z,t) = \mu_r \int_0^t \lambda(z,t_0) \left[\rho_{23}(z,t,t_0) + \rho_{32}(z,t,t_0) \right] dt_0 \quad (\text{III.16})$$

où l'origine des temps est fixée à l'instant initial de la commutation du rayonnement IR de pompe.

Il est intéressant d'introduire la matrice densité $\rho(z,t)$ moyennée sur les instants t_0 d'excitation. Celle-ci est définie par :

$$\rho(z,t) = \int_0^t \lambda(z,t_0) \rho(z,t,t_0) dt_0 \quad (\text{III.17})$$

La polarisation s'exprime ainsi simplement :

$$\mathbf{P}_S(z,t) = \mu_r \rho_{23}(z,t) + cc \quad (\text{III.16}')$$

L'évolution de la polarisation locale $\mathbf{P}_S(z,t)$ est maintenant directement reliée à l'équation de mouvement de la matrice densité $\rho(z,t)$ moyennée sur les instants d'excitation. Celle-ci s'obtient en

dérivant par rapport au temps l'équation (III.17) et en introduisant l'équation de mouvement de la matrice densité $\rho(z,t,t_0)$. En considérant de plus que le taux de pompage $\lambda(z,t)$ varie lentement au cours du temps, l'équation d'évolution de $\rho(z,t)$ peut s'écrire sous la forme développée suivante :

$$\left. \begin{aligned} \dot{\rho}_{23} &= -(i\omega_{23} + \gamma) \rho_{23} + \frac{i}{\hbar} V_{23} (\rho_{22} - \rho_{33}) \\ \dot{\rho}_{22} &= \lambda - \gamma\rho_{22} - \frac{i}{\hbar} V_{23} (\rho_{32} - \rho_{23}) \\ \dot{\rho}_{33} &= -\gamma\rho_{33} + \frac{i}{\hbar} V_{23} (\rho_{32} - \rho_{23}) \end{aligned} \right\} \quad (\text{III.18})$$

Dans ces équations, $V_{23}(z,t)$ caractérise la perturbation induite par le champ SMM qui, en fonctionnement monomode s'écrit :

$$V_{23}(z,t) = -\mu_r E_{S,n}(t) \cos(\omega_n t + \varphi_n(t)) \sin K_n z \quad (\text{III.19})$$

Afin d'éliminer les termes qui oscillent rapidement dans les équations (III.18), nous effectuons la transformation des axes tournants en réécrivant les éléments non diagonaux sous la forme :

$$\rho_{23}(z,t) = \tilde{\rho}_{23}(z,t) e^{-i(\omega_n t + \varphi_n(t))} \quad (\text{III.20})$$

On obtient alors les équations locales suivantes :

$$\left. \begin{aligned} \dot{\rho}_{22} - \dot{\rho}_{33} &= \lambda - \gamma(\rho_{22} - \rho_{33}) + i \frac{\mu_r E_{S,n}}{\hbar} (\tilde{\rho}_{32} - \tilde{\rho}_{23}) \sin K_n z \\ \dot{\tilde{\rho}}_{23} + \dot{\tilde{\rho}}_{32} &= -\gamma(\tilde{\rho}_{23} + \tilde{\rho}_{32}) + i(\omega_{23} - \omega_n - \dot{\varphi}_n)(\tilde{\rho}_{32} - \tilde{\rho}_{23}) \\ i(\dot{\tilde{\rho}}_{32} - \dot{\tilde{\rho}}_{23}) &= -i\gamma(\tilde{\rho}_{32} - \tilde{\rho}_{23}) - (\omega_{23} - \omega_n - \dot{\varphi}_n)(\tilde{\rho}_{23} + \tilde{\rho}_{32}) - \frac{\mu_r E_{S,n}}{\hbar} (\rho_{22} - \rho_{33}) \sin K_n z \end{aligned} \right\} \quad (\text{III.21})$$

où l'on a négligé les termes qui oscillent à la pulsation $2\omega_n$.

Ces trois équations représentent les évolutions respectives de :

- la différence de population : $\rho_{22} - \rho_{33}$.
- la partie réelle de la cohérence induite : $\tilde{\rho}_{23} + \tilde{\rho}_{32}$ en phase avec le champ SMM et reliée à la dispersion du gaz.
- la partie complexe de la cohérence induite : $i(\tilde{\rho}_{32} - \tilde{\rho}_{23})$ en quadrature avec le champ SMM et reliée au gain du milieu amplificateur.

Introduisons maintenant les grandeurs locales suivantes :

$$C_S(z,t) = \mu_r \left[\tilde{\rho}_{23}(z,t) + \tilde{\rho}_{32}(z,t) \right] \quad (\text{III.22})$$

$$S_S(z,t) = i \mu_r \left[\tilde{\rho}_{23}(z,t) - \tilde{\rho}_{32}(z,t) \right] \quad (\text{III.23})$$

$$N(z,t) = \rho_{22}(z,t) - \rho_{33}(z,t) \quad (\text{III.24})$$

$$N^0(z,t) = \frac{\lambda(z,t)}{\gamma} \quad (\text{III.25})$$

où $N^0(z,t)$ représente l'inversion de population réalisée en absence de champ SMM et en régime stationnaire.

Les équations d'évolution de la matrice s'écrivent alors :

$$\left. \begin{aligned} \dot{N}(z,t) &= -\gamma(N(z,t) - N^0(z,t)) - \frac{E_{S,n}(t)}{\hbar} S_S(z,t) \sin K_n z \\ \dot{C}_S(z,t) &= -\gamma C_S(z,t) - (\omega_{23} - \omega_n - \dot{\varphi}_n(t)) S_S(z,t) \\ \dot{S}_S(z,t) &= -\gamma S_S(z,t) + (\omega_{23} - \omega_n - \dot{\varphi}_n(t)) C_S(z,t) + \frac{\mu_r^2 E_{S,n}(t)}{\hbar} N(z,t) \sin K_n z \end{aligned} \right\} \quad (\text{III.21'})$$

Ce système différentiel couplé décrit l'évolution locale du milieu amplificateur en présence de rayonnement SMM. Afin d'établir le lien avec les équations d'auto-cohérence présentées dans le paragraphe précédent, nous allons maintenant préciser les relations intégrales qui relient les grandeurs locales $C_S(z,t)$, $S_S(z,t)$ avec les quantités globales $C_{S,n}(t)$ et $S_{S,n}(t)$.

Ces relations intégrales s'établissent à partir de l'expression (III.13) et des relations (III.6) et (III.7) qui définissent la polarisation ; on obtient :

$$\frac{1}{2} \left[C_{S,n}(t) + i S_{S,n}(t) \right] e^{i(\omega_n t + \varphi_n)} + cc = \frac{1}{N} \int_0^L P_S(z,t) \sin K_n z \, dz \quad (\text{III.26})$$

En remplaçant maintenant $P_S(z,t)$ par l'expression (III.16') obtenue à partir de la matrice densité $\rho(z,t)$ et d'après (III.20) nous pouvons écrire :

$$\frac{1}{2} \left[C_{S,n}(t) + i S_{S,n}(t) \right] = \frac{\mu_r}{N} \int_0^L \tilde{\rho}_{32}(z,t) \sin K_n z \, dz \quad (\text{III.27})$$

A partir de cette relation et de sa complexe conjuguée, on obtient immédiatement :

$$C_{S,n}(t) = \frac{1}{N} \int_0^L C_S(z,t) \sin K_n z \, dz \quad (\text{III.28})$$

$$S_{S,n}(t) = \frac{1}{N} \int_0^L S_S(z,t) \sin K_n z \, dz \quad (\text{III.29})$$

où nous avons remplacé les éléments non diagonaux de la matrice densité par les expressions (III.22) et (III.23).

L'évolution du milieu amplificateur est donc décrite par le système différentiel couplé (III.21') tandis que le comportement transitoire du champ SMM est exprimé au moyen des équations d'auto-cohérence (III.14) et (III.15). Ces deux systèmes différentiels sont couplés et reliés par les équations intégrales (III.28) et (III.29) précédemment définies. Le passage aux grandeurs globales dans le système (III.21') pose des difficultés et, avant de les préciser, nous allons introduire des quantités sans dimensions similaires aux grandeurs utilisées par A.Z. GRASYUK et A.N. ORAYEVSKIY⁽⁴⁹⁾ au cours de l'étude du comportement transitoire d'un maser à jet.

III-3-d) Passage à des quantités sans dimension

Le passage à des quantités sans dimension proposé ici, facilite la comparaison de l'évolution relative des différentes variables introduites auparavant : champ, inversion de population et cohérences. De plus, ces grandeurs sans dimension sont du même ordre de grandeur et donc très utiles pour entreprendre une résolution numérique des équations différentielles non linéaires étudiées dans ce chapitre.

Nous fixons une échelle de temps adaptée pour décrire l'établissement de l'oscillation laser, l'unité choisie est la durée de vie moyenne des photons à l'intérieur de la cavité SMM soit : $2Q_n/\omega_n$. Le passage à cette échelle de temps est réalisé par le changement de variable $t' = \omega_n t/2Q_n$.

Nous introduisons maintenant les quantités sans dimension suivantes :

$$\xi = \frac{2Q_n \gamma}{\omega_n}$$

$$\eta = \frac{\mu_r^2 \bar{N} Q_n}{\hbar \epsilon_0 \gamma}$$

$$\Delta_1 = 2Q_n \frac{\Omega_n - \omega_n}{\omega_n}$$

$$\Delta_2 = \frac{\omega_{23} - \omega_n}{\gamma}$$

$$u = \frac{N(z,t)}{\bar{N}}$$

$$u^0 = \frac{N^0(z,t)}{\bar{N}}$$

$$y_1 = \frac{C(z,t)}{\bar{N} \mu_r}$$

$$Y_1 = \frac{C_{S,n}(t)}{\bar{N} \mu_r}$$

$$y_2 = \frac{S(z,t)}{\bar{N} \mu_r}$$

$$Y_2 = \frac{S_{S,n}(t)}{\bar{N} \mu_r}$$

$$X_S = \frac{\mu_r E_{S,n}(t)}{\hbar \gamma}$$

$$\text{avec } \bar{N} = \frac{1}{2N} \int_0^L N^0(z,t) dz$$

(III.30)

$$\text{et } Y_i = \frac{1}{N} \int_0^L y_i \sin K_n z \, dz \quad (\text{III.31})$$

La signification physique de ces différentes quantités est la suivante :

ξ : représente le rapport entre la durée de vie moyenne des photons à l'intérieur de la cavité SMM ($2Q_n/\omega_n$) et le temps de relaxation (γ^{-1}) des différentes variables moléculaires : inversion de population et cohérences. Le paramètre ξ permet de comparer l'évolution relative du champ et du milieu amplificateur.

η : fait apparaître l'inversion de population moyenne réalisée en absence de champ SMM et caractérise la dépendance du gain en fonction de l'intensité IR de pompe.

Δ_1 : caractérise l'écart entre la fréquence du champ laser et la fréquence d'accord de la cavité en adoptant comme unité la demi-largeur à mi-hauteur de la courbe de réponse de la cavité.

Δ_2 : caractérise l'écart entre la fréquence du champ laser et la fréquence de la transition moléculaire en adoptant comme unité la demi-largeur à mi-hauteur de la raie SMM.

u et u^0 : représentent les inversions de population réalisées respectivement en présence et en absence de champ rapportées à l'inversion de population moyenne en absence de champ.

y_1 et Y_1 : caractérisent respectivement la dispersion locale et globale du milieu amplificateur.

y_2 et Y_2 : caractérisent respectivement le gain local et global du milieu amplificateur.

X_S : représente le champ SMM exprimé comme le rapport de la pulsation de Rabi à la largeur collisionnelle, c'est une mesure de la saturation due au champ SMM ; en régime de faible saturation $X_S \ll 1$.

Les équations d'auto-cohérence (III.14) et (III.15) et les équations d'évolution de la matrice densité (III.21') s'écrivent alors :

$$\dot{X}_S = -X_S + \eta Y_2 \quad (\text{III.32})$$

$$\dot{\varphi}_n = \Delta_1 - \eta (Y_1 / X_S) \quad (\text{III.33})$$

$$\dot{u} = -\xi (u - u^0 + X_S y_2 \sin K_n z) \quad (\text{III.34})$$

$$\dot{y}_1 = -\xi (y_1 + \Delta_2 y_2) + \dot{\varphi}_n y_2 \quad (\text{III.35})$$

$$\dot{y}_2 = -\xi (y_2 - \Delta_2 y_1 - u X_S \sin K_n z) - \dot{\varphi}_n y_1 \quad (\text{III.36})$$

où la dérivation est effectuée par rapport au temps réduit t' et les quantités globales Y_i sont exprimées en fonction des grandeurs locales y_i d'après la relation (III.31).

Rappelons que l'équation (III.32) rend compte de l'évolution du champ SMM en fonction du gain moins les pertes de la cavité, ici la constante d'amortissement est égale à 1 car ces expressions sont relatives à une échelle de temps où l'unité est la durée de vie moyenne des photons à l'intérieur de la cavité. L'équation (III.33) détermine l'évolution de la fréquence d'émission du laser. Les équations (III.34), (III.35) et (III.36) sont locales et relatives au milieu amplificateur ; elles expriment respectivement l'évolution de l'inversion de population, de la dispersion et du gain du milieu. Notons que dans l'échelle de temps choisie, les équations d'évolution de ces variables moléculaires font apparaître le paramètre ξ qui caractérise l'évolution relative du champ SMM et du milieu amplificateur.

Les équations différentielles (III.32) à (III.36) et la relation (III.31) permettent donc de décrire la montée en oscillation du laser SMM dans un modèle à deux niveaux d'énergie. Avant de discuter ces différentes équations, nous allons compléter le modèle présenté ici en exprimant la dépendance du gain en fonction de la puissance IR de pompe qui apparaît dans le paramètre η .

III-3-e) Dépendance du gain en fonction de la puissance IR de pompe

Dans le modèle à deux niveaux d'énergie présenté ici, la dépendance du gain en fonction de la puissance IR de pompe apparaît dans le paramètre η et plus précisément dans l'inversion de population moyenne \bar{N} réalisée en absence de champ SMM. L'expression de \bar{N} s'obtient aisément à partir d'un modèle d'équations de population.

Considérons les molécules de vitesse axiale v suivant la direction de propagation du rayonnement IR et occupant la position z à l'instant t . A l'équilibre thermodynamique et en absence de rayonnements IR et SMM, on néglige les populations des différents niveaux de rotation dans l'état de vibration excité car la probabilité relative d'occupation de ces niveaux est très faible ($\sim 10^{-2}$). Soient $N_1(v, z, t)$ et $N_2(v, z, t)$ les densités de population respectives des niveaux inférieur et supérieur de la transition IR de pompe. En absence de champ SMM, nous pouvons écrire les équations de population suivantes :

$$\frac{\partial N_1(v, z, t)}{\partial t} = N_{21}(v, z, t) W_p(v, z, t) + \gamma(N_1^0 f(v) - N_1(v, z, t)) \quad (\text{III.37})$$

$$\frac{\partial N_2(v, z, t)}{\partial t} = -N_{21}(v, z, t) W_p(v, z, t) - \gamma N_2(v, z, t) \quad (\text{III.38})$$

La signification des différentes quantités introduites dans ces équations est la suivante :

- $W_p(v, z, t)$ représente le taux de transition $1 \rightarrow 2$ induit par le rayonnement de pompe :

$$W_p(v, z, t) = \frac{\gamma X_p^2(z, t)}{2} L(\omega_p - \Delta\omega_p)$$

où

$$X_p(z, t) = \frac{\mu_v E_p(z, t)}{\hbar\gamma}$$

avec μ_v : moment dipolaire de la transition IR

E_p : amplitude du champ IR

et $L(\omega_p - \Delta\omega_p) = \frac{\gamma^2}{\gamma^2 + \left[\omega_{12} - \omega_p \left(1 - \frac{v}{c}\right)\right]^2}$ est la forme lorentzienne pour les molécules de vitesse v .

- N_1^0 représente la population du niveau inférieur de la transition IR en absence de champ et à l'équilibre thermodynamique :

$$N_1^0 = f_1 N_V^0$$

où N_V^0 est la population totale du niveau fondamental de vibration

$$\text{et } f_1 = g_1 \frac{e^{-E_1/KT}}{Z} \quad \left\{ Z = \sum_i g_i e^{-E_i/KT} \right. \text{ est la fonction}$$

de partition de ce niveau de vibration et g_i du dégénérescence du niveau i).

- N_{21} représente la différence de population entre les deux niveaux connectés par le champ IR.

$$N_{21} = N_2 - N_1$$

- $f(v)$ est la fonction de distribution des vitesses de Maxwell Boltzmann :

$$f(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi} v_0} e^{-\frac{v^2}{v_0^2}}$$

où v_0 est la vitesse la plus probable.

A l'équilibre thermodynamique et en absence de champ SMM, le niveau inférieur de la transition SMM n'est pas peuplé et l'inversion de population $N^0(z,t)$ est simplement exprimée en fonction de la population du niveau supérieur N_2 , soit :

$$N^0(z,t) = N_2(z,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} N_2(v,z,t) dv \quad (\text{III.39})$$

En régime stationnaire, on obtient immédiatement à partir des équations de population (III.37) et (III.38) :

$$N_2(v,z,t) = N_1^0 f(v) \frac{W_p(v,z,t)}{\gamma + 2W_p(v,z,t)} \quad (\text{III.40})$$

Les expressions (III.39) et (III.40) déterminent l'inversion de population $N^0(z,t)$:

$$N^0(z,t) = \frac{N_1^0}{2} \left[1 - \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma f(v)}{\gamma + 2W_p(v,z,t)} dv \right] \quad (\text{III.39}')$$

où nous avons tenu compte de la normalisation à l'unité de la fonction de distribution des vitesses de Maxwell Boltzmann.

En considérant que l'élargissement homogène de la transition IR est beaucoup plus petit que son élargissement Doppler ($\Delta v_H / \Delta v_D \sim 10^{-2}$ à 10 mTorr) et dans le cas d'un rayonnement IR résonnant avec la transition rovibrationnelle $1 \rightarrow 2$, l'intégration de l'équation (III.39') conduit à la forme approchée suivante, lorsque Δv_H est très petit devant Δv_D ⁽²⁴⁾ :

$$N^0(z,t) = \frac{N_1^0}{2} \frac{\epsilon_p \pi^{1/2} I_p}{(1 + I_p)^{1/2}} \quad (\text{III.41})$$

où l'on a posé :

$$\epsilon_p = (\text{Log } 2)^{1/2} \frac{\Delta v_H}{\Delta v_D} \ll 1$$

et

$I_p = \frac{X_p^2}{2}$ qui représente l'intensité réduite du rayonnement IR de pompe.

En considérant à présent, une valeur moyenne de l'intensité du rayonnement IR de pompe à l'intérieur de la cavité SMM : \bar{I}_p , on obtient d'après (III.30) l'expression du paramètre η qui caractérise la dépendance du gain en fonction de l'intensité IR de pompe :

$$\eta = \frac{N_1^0 \mu_r^2 Q_n}{2\hbar \epsilon_0 \gamma} \frac{\epsilon_p \pi^{1/2} \bar{I}_p}{(1 + \bar{I}_p)^{1/2}} \quad (\text{III.42})$$

Cette expression complète le modèle à deux niveaux d'énergie présenté dans cette troisième partie. Au cours du paragraphe suivant, nous allons discuter de l'évolution relative des différentes variables introduites dans les équations (III.32) à (III.36) qui déterminent le comportement transitoire du laser SMM.

III-3-f) Elimination adiabatique des variables

La discussion présentée dans ce paragraphe est basée sur la comparaison du temps d'évolution du champ par rapport à celui des variables moléculaires : inversion de population et polarisation. Afin de simplifier l'analyse, nous considérons que les écarts à la résonance Δ_1 et Δ_2 sont nuls. Dans cette hypothèse, la dérivée $\dot{\psi}_n$ qui caractérise le déplacement de la fréquence d'émission pendant l'établissement de l'oscillation laser reste nulle et l'équation de dispersion (III.35) est découplée des autres équations différentielles. Notons cependant que la discussion présentée ici se généralise à de faibles écarts à la résonance car la montée en oscillation du laser est toujours observée après un délai supérieur à 5 μ s et la dérivée $\dot{\psi}_n$ est alors négligeable.

Dans l'hypothèse où les écarts à la résonance Δ_1 et Δ_2 sont nuls, l'établissement de l'oscillation laser est donc décrit par les équations différentielles suivantes :

$$\dot{X}_S = -X_S + \eta Y_2 \quad (\text{III.32})$$

$$\dot{u} = -\xi (u - u^0 + X_S y_2 \sin K_n z) \quad (\text{III.34})$$

$$\dot{y}_2 = -\xi (y_2 - u X_S \sin K_n z) \quad (\text{III.36}')$$

Les quantités sans dimension, introduites dans ces équations sont du même ordre de grandeur. Dans nos conditions expérimentales, le paramètre η est compris entre 1 et 5. De plus, les valeurs du champ et de la polarisation sont toujours comparables. Initialement elles sont très faibles ($\sim 10^{-6}$) et l'inversion de population est voisine de la valeur u^0 en absence de champ SMM. Au cours de l'établissement de l'oscillation laser, les valeurs maximales atteintes par le champ et la polarisation restent toujours de l'ordre de l'unité. L'évolution

relative du champ SMM et des variables moléculaires dépend donc principalement de la valeur du paramètre ξ . Celui-ci, proportionnel à la pression du milieu amplificateur est voisin de 0,1 pour une pression de 2 mTorr.*

Afin d'interpréter les différents régimes observés lors de l'établissement de l'émission laser (cf III.2), nous considérons maintenant les deux cas limites : $\xi \ll 1$ et $\xi \gg 1$.

A basse pression ($\xi \ll 1$), le temps d'évolution des variables moléculaires, caractérisé par ξ^{-1} dans l'échelle de temps utilisé ici, est grand devant celui du champ. Dans ce cas, on peut considérer que le champ est une variable "rapide" tandis que l'inversion de population et la polarisation sont des variables "lentes". A chaque instant, le champ est en équilibre avec l'inversion de population et la polarisation ; il suit adiabatiquement l'évolution lente des variables moléculaires. La montée en oscillation du laser est alors principalement décrite par les équations différentielles (III.34) et (III.36') dans lesquelles on peut remplacer le champ par sa valeur en régime quasi-stationnaire ($X_S = \eta Y_2$). Le cas limite : $\xi \ll 1$ correspond au régime non linéaire précédemment défini (cf III.2) dans lequel l'établissement de l'émission laser présente une suroscillation avant d'atteindre un état stationnaire. Ce comportement est comparable aux effets transitoires observés dans le domaine millimétrique^(4, 39) où la réponse d'un système quantique soumis à une modification de ses conditions d'excitation se caractérise par des oscillations de Rabi amorties. Notons cependant que dans notre situation l'interprétation des effets est rendue difficile car l'amplitude du champ SMM et donc la pulsation de Rabi associée ($\mu_r E_S / \hbar$) varient au cours du temps.

* Cette valeur est déterminée pour la fréquence des émissions observées (~ 400 GHz), sur la base d'un élargissement collisionnel de $20 \text{ kHz mTorr}^{-1}$ et après avoir estimé le coefficient de qualité en fonction de pertes de la cavité ($Q \sim 5 \times 10^5$).

A haute pression ($\xi \gg 1$) l'inversion de population et la polarisation peuvent être considérées comme des variables "rapides" et elles suivent adiabatiquement l'évolution lente du champ. Pour ce domaine de pression, qui correspond au régime de faible saturation, le comportement transitoire est donc décrit par l'évolution lente du champ à l'intérieur de la cavité laser.

Notons que l'approximation $\xi \gg 1$ peut s'écrire de façon équivalente :

$$\frac{2Q_n}{\omega_n} \gg \gamma^{-1}$$

La quantité $2Q_n/\omega_n$ représente la durée de vie moyenne des photons à l'intérieur de la cavité SMM et caractérise le temps de montée du résonateur. De façon générale, la montée en oscillation du laser est toujours limitée par le temps de montée du résonateur qui est supposé très long devant le temps de relaxation rotationnelle γ^{-1} dans l'approximation $\xi \gg 1$. Ceci entraîne que le champ varie peu pendant un intervalle de temps γ^{-1} et nous retrouvons les conditions de validité de la théorie au 3ème ordre de LAMB. Précisons toutefois que l'approximation $\xi \gg 1$ est plus restrictive car elle se rapporte au temps de montée du résonateur, toujours inférieur au temps d'évolution du champ qui sert de référence dans le calcul de LAMB.

En régime de faible saturation, le passage aux grandeurs globales dans les équations d'évolution des variables moléculaires ne présente pas de difficulté et on retrouve aisément l'équation d'évolution du champ établie dans la théorie au 3ème ordre. Afin de préciser ce point, nous appliquons l'approximation $\xi \gg 1$ aux équations différentielles (III.32) à (III.36) établies dans le cas général.

A chaque instant, l'inversion de population et la polarisation sont en équilibre avec le champ et nous pouvons procéder à une élimination adiabatique des variables moléculaires, soit : $\dot{u} = \dot{y}_1 = \dot{y}_2 = 0$. On obtient alors l'expression de la partie imaginaire de la polarisation à partir des équations (III.34), (III.35) et (III.36) :

$$y_2 = u^0 \frac{(1 + \Delta_2^2)^{-1} X_S \sin K_n z}{1 + X_S^2 \sin^2 K_n z (1 + \Delta_2^2)^{-1}} \quad (\text{III.43})$$

où l'on a négligé les termes du second ordre : $\left(\frac{\epsilon}{\xi}\right)^2$ et $\frac{\Delta_2 \epsilon}{\xi}$

La détermination de la quantité globale Y_2 introduite dans l'équation d'évolution du champ (III.32) est réalisée d'après la relation intégrale (III.31). L'intégration est effectuée en considérant que l'inversion de population en absence de champ (u^0) varie peu sur une longueur d'onde SMM, c'est à dire :

$$\frac{1}{N} \int_0^L u^0 \sin^2 K_n z = \frac{1}{2N} \left\{ \int_0^L u^0 dz - \sum_{j=0}^{n-1} u^0 \left(\frac{\lambda}{2}\right)^j \int_{\frac{\lambda}{2}}^{(j+1)\frac{\lambda}{2}} \cos 2K_n z dz \right\} = 1 \quad (\text{III.44})$$

On obtient alors, en développant (III.43) au 3ème ordre par rapport au champ, l'expression de la partie réelle de la polarisation :

$$Y_2 = \frac{X_S}{1 + \Delta_2^2} - \frac{3}{4} \frac{X_S^3}{(1 + \Delta_2^2)^2} \quad (\text{III.45})$$

En reportant cette expression dans l'équation d'évolution du champ (III.32), on obtient :

$$\dot{X}_S = X_S \left(\frac{\eta}{1 + \Delta_2^2} - 1 - \frac{3}{4} \eta \frac{X_S^2}{(1 + \Delta_2^2)^2} \right) \quad (\text{III.46})$$

L'analogie avec la théorie au 3ème ordre est établie en exprimant l'équation (III.46) dans l'échelle de temps usuelle. Les correspondances entre les quantités sans dimension et les notations de LAMB sont les suivantes :

$$X_S^2 = 2I_S$$

$$\frac{1}{1 + \Delta_2^2} = L(\omega_{23} - \omega_S)$$

$$\eta \frac{\omega_n}{2Q} = F_1 \quad : \quad \text{facteur du 1er ordre en champ}$$

$$\frac{3}{2} \eta \frac{\omega_n}{2Q} = F_3 \quad : \quad \text{facteur du 3ème ordre en champ}$$

La signification physique de ces différentes quantités a été rappelée dans la partie précédente et l'équation (III.46) est identique à l'équation du champ (III.1) établie en régime de faible saturation.

Dans l'équation d'évolution (III.46), le gain linéaire α est représenté par la quantité $\eta/(1+\Delta_2^2) - 1$. La condition de début d'oscillation du laser est obtenue pour un gain linéaire positif soit à la résonance dès que $\eta > 1$.

Ce paragraphe nous a donc permis de préciser l'origine physique des différents régimes observés lors de la montée en oscillation du laser. Dans le régime de faible saturation, nous avons retrouvé les résultats de la théorie au 3ème ordre de LAMB. Dans le régime non linéaire, le passage à des grandeurs globales dans les équations d'évolution des variables moléculaires pose des difficultés que nous présentons dans le paragraphe suivant.

III-3-g) Passage à des grandeurs globales

Par souci de simplicité, nous considérons une nouvelle fois le cas où les écarts à la résonance Δ_1 et Δ_2 sont nuls. Dans cette hypothèse, l'établissement de l'oscillation laser est décrit par les trois équations différentielles (III.32), (III.34) et (III.36') que nous rappelons ici :

$$\dot{X}_S = -X_S + \eta Y_2 \quad \text{(III.32)}$$

$$\dot{u} = -\xi (u - u^0 + X_S y_2 \sin k_n z) \quad \text{(III.34)}$$

$$\dot{y}_2 = -\xi (y_2 - u X_S \sin k_n z) \quad \text{(III.36')}$$

Afin de déterminer l'évolution de la polarisation globale Y_2 qui intervient dans l'équation du champ (III.32), nous

sommes conduit à intégrer les équations locales (III.34) et (III.36') par rapport à la coordonnée axiale z . Le passage à des grandeurs globales dans ces équations est établi d'après les relations intégrales (III.30) et (III.31) et ne présente pas de difficulté dans l'équation d'évolution de la population (III.34). En revanche, l'intégration de l'équation (III.36') est rendue difficile par la présence du terme $u X_S \sin K_n z$ qui conduit, après projection sur le mode n à la détermination de l'intégrale suivante :

$$\frac{1}{N} \int_0^L u X_S \sin^2 K_n z \, dz \quad (\text{III.47})$$

Le calcul de cette intégrale nécessite la connaissance de la dépendance spatiale $u(z,t)$ que nous pouvons préciser en intégrant les équations différentielles (III.34) et (III.36') à partir d'un développement en ordres successifs par rapport au champ X_S . On montre alors que la polarisation ne comprend que des puissances impaires en $\sin K_n z$ tandis que l'inversion de population, des puissances paires. Ces deux quantités s'expriment donc sous la forme suivante :

$$u(z,t) = \sum_{j=0}^{\infty} u_{2j}(t) \cos 2j K_n z \quad (\text{III.48})$$

$$y_2(z,t) = \sum_{j=0}^{\infty} y_{2j+1}(t) \sin [(2j+1)K_n z] \quad (\text{III.49})$$

Le calcul de l'intégrale (III.47) à partir du développement (III.48) fait apparaître le coefficient $u_2(t)$ qui exprime le couplage du champ avec l'harmonique spatial d'ordre deux de l'inversion de population. A ce stade, il est donc nécessaire de connaître l'équation d'évolution de $u_2(t)$. Celle-ci est déterminée à partir des équations (III.34) et (III.36') en identifiant les termes de même harmonique spatial après avoir remplacé $u(z,t)$ et $y_2(z,t)$ par leurs développements respectifs. En fait, les différents coefficients ne sont pas indépendants et on obtient alors un système infini d'équations différentielles couplées que l'on peut mettre sous la forme :

$$\dot{x}_j = -\xi x_j + \frac{\xi X_S}{2} (x_{j-1} - x_{j+1}) + \xi u^0 \delta_{j0} \quad (\text{III.50})$$

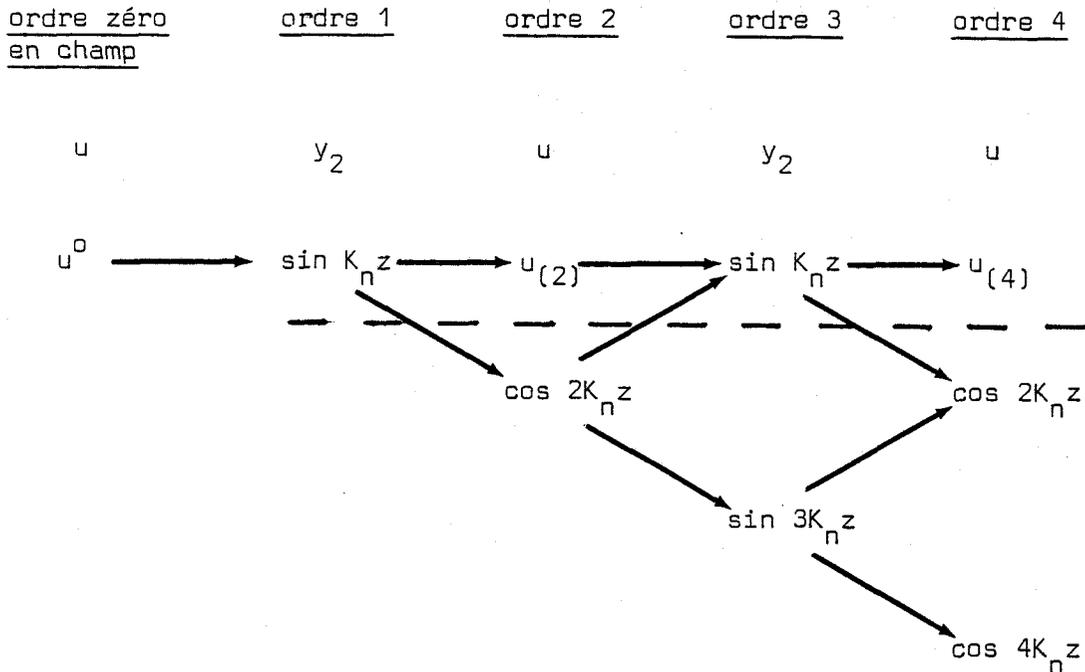
avec $x_j = u_j$ si j est pair

$x_j = y_j$ si j est impair

Ce système différentiel montre l'étroite dépendance qui relie les différents coefficients des développements de l'inversion de population et de la polarisation couplés par le champ SMM. Dans le cas général, le système (III.50) n'admet pas de solution analytique ; en régime stationnaire ($\dot{x}_j = 0$) STENHOLM et LAMB, dans la théorie du laser en champ fort, déterminent l'expression des coefficients x_j sous forme d'une fraction continue⁽⁴⁶⁾ ou sous forme intégrale dans le cas particulier d'un taux de relaxation unique⁽⁵⁰⁾. En régime transitoire et dans le cas d'un milieu optiquement fin c'est à dire lorsque l'amplitude du champ ne dépend pas du temps, plusieurs auteurs^(51,52,53) expriment les différents coefficients à partir des fonctions de Bessel. Ici, le problème est particulièrement difficile car le champ X_S est une fonction du temps et le système différentiel (III.50) est donc à coefficients dépendant du temps. Afin de conserver une description du problème avec les trois équations différentielles (III.32), (III.34) et (III.36'), nous proposons maintenant une approximation sur les harmoniques spatiaux.

Nous considérons une valeur moyenne de l'inversion de population : $u_0(t)$ en négligeant toutes les composantes en $\cos 2j K_n z$ pour $j \geq 1$ dans le développement (III.48). Dans cette hypothèse, nous sommes conduit à ne considérer d'après l'équation (III.34) que le premier harmonique de la polarisation : $y_2(t) \sin K_n z$. La signification physique de cette approximation, peut être illustrée par le schéma ci-dessous qui représente les différentes contributions à la polarisation et à l'inversion de population aux ordres successifs par rapport au champ :

$$X_S \sin K_n z.$$



A l'ordre zéro en champ, l'inversion de population ne comprend que le terme u^0 qui représente l'inversion de population réalisée en absence de champ. A l'ordre un, les équations d'évolution (III.34) et (III.36') font apparaître uniquement un terme en $\sin K_n z$ pour la polarisation ; à l'ordre deux, le terme en $\sin^2 K_n z$ dans l'expression (III.34) contribue à un terme indépendant de z : $u_{(2)}$ et au premier harmonique de l'inversion de population ; en réitérant aux ordres successifs par rapport au champ on obtient les contributions aux différents harmoniques de l'inversion de population et de la polarisation qui apparaissent dans les développements (III.48) et (III.49).

La ligne pointillée représente l'approximation proposée ici qui revient à tronquer les développements de l'inversion de population et de la polarisation à leurs premiers termes respectifs. Précisons cependant que la limitation au terme indépendant de z pour l'inversion de population permet de considérer en partie les effets de saturation car les différents ordres en champ contribuent à ce terme indépendant de z ainsi qu'il apparaît sur le schéma ci-dessus ; il en est de même pour le premier harmonique de la polarisation.

En toute rigueur, l'approximation est justifiée lorsque les molécules ont une vitesse axiale non négligeable ($K_n v / \gamma > 1$) ; on peut alors considérer qu'en se déplaçant sur plusieurs longueurs d'onde SMM pendant un intervalle de temps γ^{-1} , les molécules sont soumises à un champ d'amplitude moyenne.

Dans l'approximation proposée ici, nous considérons donc maintenant :

$$u(z,t) = u_0(t)$$

$$y_2(z,t) = y_2(t) \sin K_n z$$

L'intégration des équations (III.34) et (III.36') par rapport à la coordonnée axiale z ne pose plus de difficulté et on obtient d'après les relations intégrales (III.30) et (III.31) :

$$\dot{U} = -\xi \left(U - 1 + \frac{X_S Y_2}{2} \right) \quad (\text{III.51})$$

$$\dot{Y}_2 = -\xi (Y_2 - U X_S) \quad (\text{III.52})$$

où $U = u_0(t)$

Dans le cadre du modèle à deux niveaux d'énergie et en supposant le rayonnement SMM en résonance, l'établissement de l'émission laser est donc décrit par les trois équations différentielles (III.32), (III.51) et (III.52). Ces trois équations différentielles non linéaires sont couplées et nous présentons dans le paragraphe suivant une résolution numérique de ces équations dont la forme définitive est donnée ci-dessous :

$$\left. \begin{aligned} \dot{X}_S &= -X_S + \eta Y_2 \\ \dot{U} &= -\xi \left(U - 1 + \frac{X_S Y_2}{2} \right) \\ \dot{Y}_2 &= -\xi (Y_2 - U X_S) \end{aligned} \right\} \quad (\text{III.53})$$

III-3-h) Résolution numérique

L'intégration numérique des équations d'évolution précédemment établies a été effectuée sur l'ordinateur du C.I.T.I.* au moyen de la méthode de RUNGE KUTTA.

Les différents paramètres utilisés pour ce calcul sont reportés dans le tableau ci-dessous. L'intensité IR à l'intérieur de la cavité a été estimée pour une puissance de pompe de 1W, en considérant que l'extension transversale du faisceau IR est comparable à celle du mode SMM dont le rayon moyen est de l'ordre de 20 mm à 400 GHz⁽²⁴⁾. Le coefficient de qualité est estimé pour une valeur des pertes par passage de l'ordre de 2% (cf I-3). La probabilité d'occupation du niveau inférieur de la transition IR a été calculée en tenant compte de la dégénérescence de ce niveau et pour une valeur de la fonction de partition égale à 8800^(24,54). Nous avons choisi des moments dipolaires des transitions IR et SMM en accord avec les valeurs habituellement utilisées. Ces données permettent d'obtenir une gamme d'oscillation du laser comparable à celle déterminée expérimentalement : l'émission SMM est détectée dans un domaine de pression compris entre 2 et 35 mTorr, pour une puissance IR de l'ordre de 1W. Pratiquement, ceci est réalisé lorsque la valeur du paramètre η qui caractérise la dépendance du gain en fonction de l'intensité IR de pompe (relation III.42) vérifie la condition de seuil d'oscillation pour la borne supérieure du domaine de pression où le laser oscille ($\eta = 1$ à 35 mTorr).

L'intensité initiale du champ SMM a été estimée dans la thèse de J. WASCAT⁽⁸⁾, d'une part en comparant l'importance relative du rayonnement thermique et de l'émission spontanée, d'autre part en adaptant la forme théorique établie dans le modèle de LAMB (relation III.2) aux courbes expérimentales obtenues en régime de faible saturation. On montre ainsi que l'intensité initiale provient essentiellement du rayonnement thermique, elle est de l'ordre de 10^{-12} Wm^{-2} .

* Centre Interuniversitaire de Traitement de l'Information de l'Université de Lille I.

Tableau des différents paramètres utilisés pour l'intégration numérique du système différentiel III.53

intensité IR	$8 \times 10^{-2} \text{ W/cm}^2$
coefficient de qualité de la cavité	$Q = 5 \times 10^5$
coefficient d'élargissement Doppler	0.9 kHz/GHz
coefficient d'élargissement collisionnel	20 kHz/mTorr
probabilité d'occupation du niveau 1	$f_1 = 2 \times 10^{-4}$
moment dipolaire de la transition SMM	$\mu_r = 0,7 \text{ Debye}$
moment dipolaire de la transition IR	$\mu_v = 0,05 \text{ Debye}$

La figure III-7 représente les courbes théoriques obtenues pour différentes valeurs de la pression du milieu amplificateur*. Le domaine de variation ainsi que l'évolution du délai (T_D) et du temps de montée (T_M) sont en bon accord avec les résultats expérimentaux exposés précédemment (§III-2). A haute pression, les valeurs importantes de T_D et T_M sont caractéristiques du régime de faible saturation et la courbe théorique obtenue pour la valeur de pression la plus élevée (25 mTorr) rend compte de la montée aperiodique de l'oscillation laser. Pour des valeurs de pressions décroissantes, les courbes théoriques montrent la suroscillation observée en régime non linéaire : celle-ci correspond en fait à un début d'oscillation amortie qui apparaît nettement sur les courbes calculées à basse pression. Expérimentalement, ce comportement est toujours très fortement amorti et une comparaison quantitative nécessiterait un modèle prenant en compte différents mécanismes d'amortissement supplémentaires qui résultent notamment de l'extension transversale finie du mode SMM⁽³⁹⁾, de l'inhomogénéité du pompage IR ou encore de l'effet Doppler résiduel concernant la classe de vitesse pompée.

Les courbes théoriques obtenues pour différentes valeurs de pression montrent donc que les équations d'évolution établies à partir d'un modèle à deux niveaux d'énergie permettent de décrire les régimes de faible saturation et non linéaire observés à l'établissement de l'oscillation laser. Notons que le calcul des relations intégrales définies précédemment peut être inclus dans la résolution numérique des équations

* Nous avons indiqué entre parenthèses la valeur de x_s^2 atteinte en régime stationnaire.

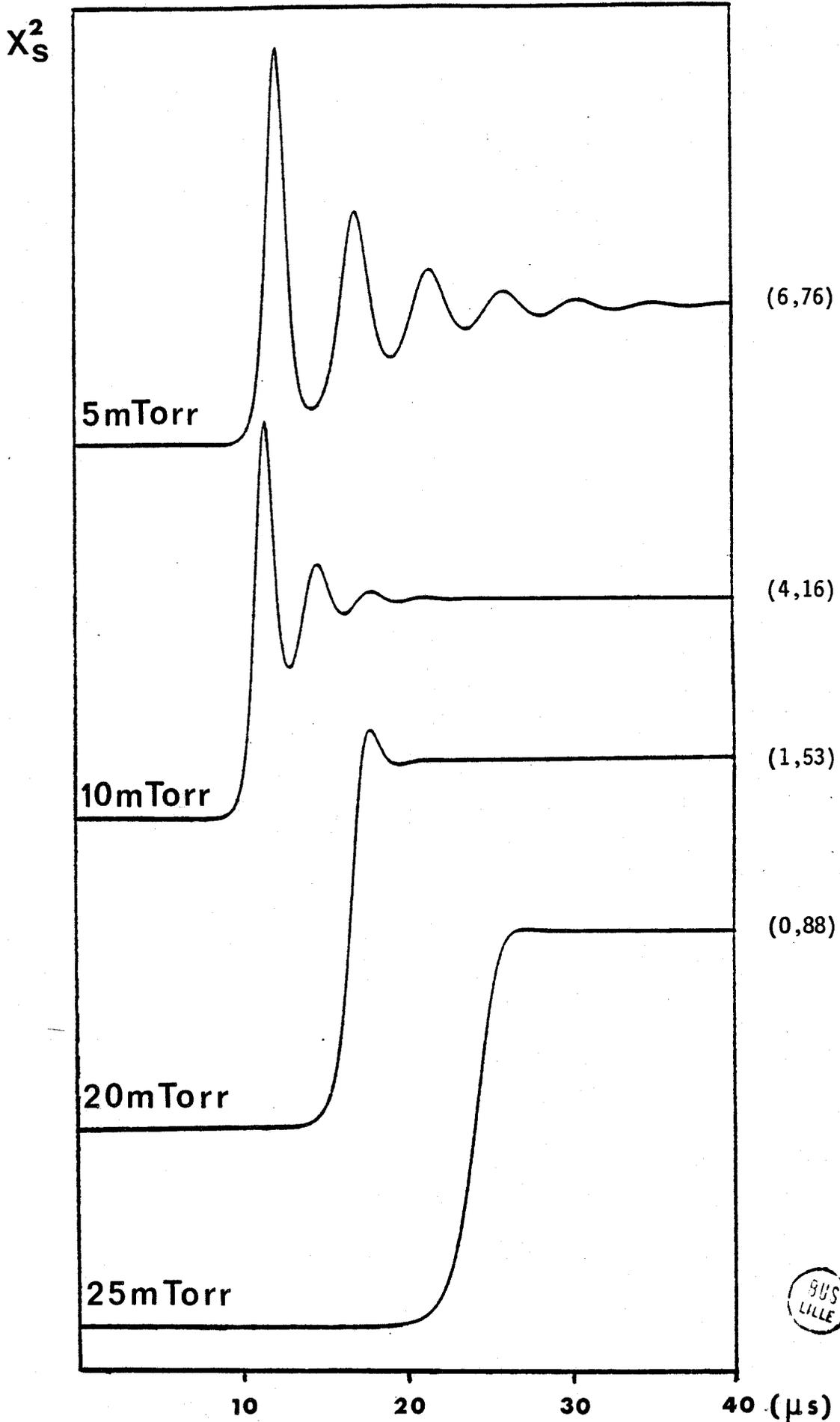


Figure III-7 : Forme théorique de l'établissement de l'émission SMM pour différentes valeurs de la pression du milieu amplificateur. Toutes les courbes calculées dans ce chapitre sont normalisées à l'unité pour la valeur de l'amplitude maximale.

d'évolution sans nécessiter d'approximation sur les harmoniques spatiaux. Cependant, l'analyse développée dans cette troisième partie présente l'avantage d'établir un système différentiel qui ne fait plus intervenir de relations intégrales et qui peut être utilisé aisément pour interpréter d'autres comportements possibles du laser, la partie suivante en donne une illustration.

III - 4) ANALYSE DE STABILITE LINEAIRE ; COMPORTEMENT OSCILLATOIRE

La modification rapide des conditions d'excitation d'un laser donne naissance à une grande variété de phénomènes. La partie précédente nous a permis de préciser, dans le cas du laser SMM, un premier ensemble d'effets transitoires observés lors de l'établissement du régime stationnaire. Il existe cependant des situations où le laser SMM bien qu'excité de façon continue n'atteint pas un régime stationnaire, dans ces conditions la puissance de sortie présente une modulation dont la figure III-8 donne un exemple. Cet effet a été mis en évidence en début de cette étude⁽⁸⁾ mais les conditions d'apparition des oscillations n'étaient pas définies précisément.

De tels comportements ont aussi été observés précédemment par exemple dans les masers à rubis^(55,56) et interprété par H. STATZ et G. DE MARS⁽⁵⁷⁾ comme résultant du couplage entre le champ et l'inversion de population. Ces deux auteurs ont alors décrit les effets observés à partir de deux équations différentielles couplées exprimant l'évolution du champ et de l'inversion de population. TANG⁽⁵⁸⁾ a justifié ces deux équations à l'aide du formalisme de la matrice densité en considérant que, dans le cas du maser à rubis, le temps de relaxation des populations est beaucoup plus long que celui des cohérences.

Cependant, dans le modèle de H. STATZ et G. DE MARS, l'établissement d'un régime oscillatoire non amorti est uniquement fondé sur la résolution numérique des deux équations différentielles décrivant l'évolution du champ et de l'inversion de population. G. MAHKOV⁽⁵⁹⁾ puis D.M. SINNETT⁽⁶⁰⁾ ont critiqué l'interprétation proposée par H. STATZ et G. DE MARS et ils ont montré que les équations établies dans ce modèle ne permettaient pas de rendre compte des oscillations non amorties observées dans le maser à rubis.

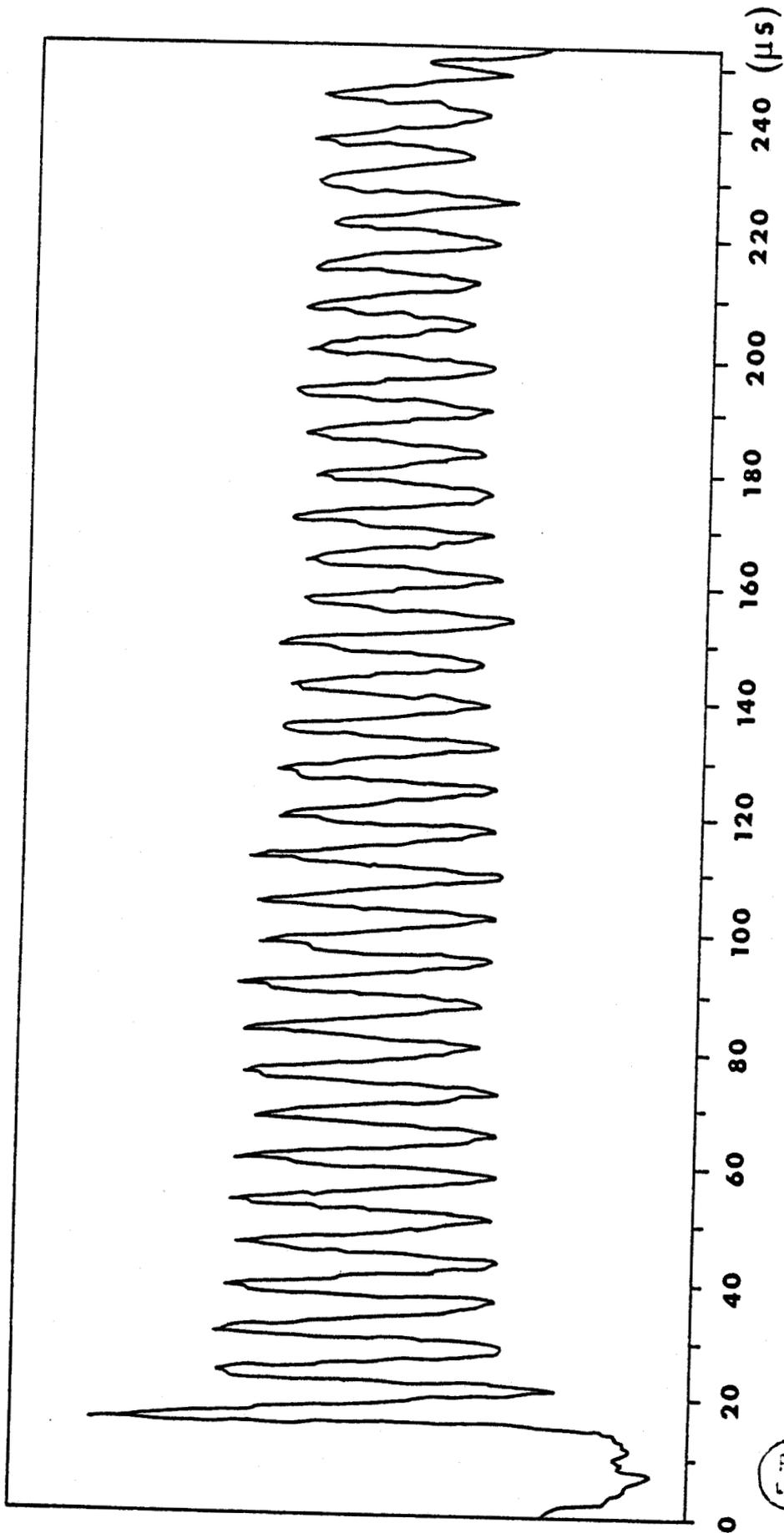
BUS
LILLE

Figure III-8 : Exemple de comportement oscillatoire non amorti, détecté sur l'émission à $742 \mu\text{m}$ de H^{12}COOH (9R40).
Pression du milieu amplificateur : 4 mTorr, Puissance IR de pompe : 830 mW.

Dans le cas du laser SMM, nous avons établi au cours de la partie précédente, un système de trois équations différentielles qui permet de décrire, à la résonance, l'établissement de l'émission laser après la commutation rapide de la puissance IR de pompe et plus particulièrement les régimes de faible saturation et non linéaire observés expérimentalement. A ce stade, il est donc intéressant de rechercher si les équations établies permettent de prévoir un comportement oscillatoire non amorti.

La recherche d'un tel comportement est basée sur l'analyse de la stabilité linéaire des équations d'évolution au voisinage du point d'équilibre présentées ci-dessous.

III-4-a) Analyse de stabilité linéaire.

Rappelons que, de façon générale, un point d'équilibre d'un système physique est stable si, après avoir été légèrement écarté de sa position d'équilibre, le système évolue à nouveau vers cette position.

Dans le cas particulier du système différentiel III.53, nous appelons ϵ_i les faibles variations au voisinage de la position d'équilibre :

$$\left. \begin{aligned} X_S &= X_S^e + \epsilon_x \\ U &= U^e + \epsilon_u \\ Y_2 &= Y_2^e + \epsilon_y \end{aligned} \right\} \quad \text{(III.54)}$$

et l'indice e est utilisé pour représenter les valeurs à l'équilibre. La condition de stabilité est vérifiée si les variations : ϵ_x , ϵ_u et ϵ_y tendent vers zéro lorsque le temps t tend vers l'infini (il s'agit de la stabilité asymptotique au sens de LIAPOUNOV⁽⁶¹⁾). Le système différentiel III.53 admet deux positions d'équilibre : l'une obtenue pour $X_S^e = Y_2^e = 0$ et $U^e = 1$ est stable pour $\eta < 1$; cette solution triviale, correspond au cas où le laser n'émet pas. Pour l'autre solution, les valeurs à l'équilibre du champ, de l'inversion de population et de la polarisation s'obtiennent aisément à partir du système III.53 :

$$X_S^e = [2(\eta-1)]^{1/2} \quad (\text{III.55})$$

$$U^e = \frac{1}{\eta} \quad (\text{III.56})$$

$$Y_2^e = \frac{1}{\eta} [2(\eta-1)]^{1/2} \quad (\text{III.57})$$

En remplaçant les expressions (III.54) dans le système (III.53) on obtient, après linéarisation, le système différentiel suivant :

$$\left. \begin{aligned} \dot{\epsilon}_x &= -\epsilon_x + \eta \epsilon_y \\ \dot{\epsilon}_u &= -\xi \left[\epsilon_u + \frac{1}{2} (X_S^e \epsilon_y + Y_2^e \epsilon_x) \right] \\ \dot{\epsilon}_y &= -\xi \left[\epsilon_y - U^e \epsilon_x - X_S^e \epsilon_u \right] \end{aligned} \right\} \quad (\text{III.58})$$

Ces équations caractérisent l'évolution des faibles variations au voisinage du point d'équilibre. La solution générale de ce système différentiel s'exprime par des combinaisons linéaires des solutions particulières : $\epsilon_i = \epsilon_i^0 e^{\lambda_i t}$ où ϵ_i est un vecteur à trois composantes et les λ_i représentent les racines de l'équation caractéristique suivante :

$$\lambda^3 + (1 + 2\xi) \lambda^2 + \xi (1 + \eta\xi) \lambda + 2 \xi^2 (\eta - 1) = 0 \quad (\text{III.59})$$

La condition de stabilité ($\epsilon_x, \epsilon_u, \epsilon_y \rightarrow 0$ quand $t \rightarrow \infty$) est donc vérifiée lorsque la partie réelle de chaque racine λ_i est négative et nous sommes conduit à rechercher le signe des solutions de l'équation caractéristique (III.59).

Cette étude peut être entreprise en appliquant le critère de ROUTH-HURWITZ⁽⁶²⁾ (cf Annexe) ; on obtient alors deux conditions pour que chaque λ_i ait une partie réelle négative :

$$\eta > 1$$

$$(1+2\xi)(1+\eta\xi) - 2\xi(\eta-1) > 0$$

La première inégalité ($\eta > 1$) exprime la condition de seuil d'oscillation que nous avons déjà exprimée en régime de faible saturation (cf III-3-f). La seconde inégalité est triviale pour $\xi \geq \frac{1}{2}$. En revanche, dans le cas contraire, elle n'est plus vérifiée pour η suffisamment grand :

$$\eta \geq \frac{1}{\xi} \left(\frac{1 + 4\xi}{1 - 2\xi} \right) = \eta_c \quad (\text{III.60})$$

Il apparaît ainsi un domaine de variation du paramètre η où de position d'équilibre (X_S^e, U^e, Y_2^e) est instable (cf Fig. III-9)

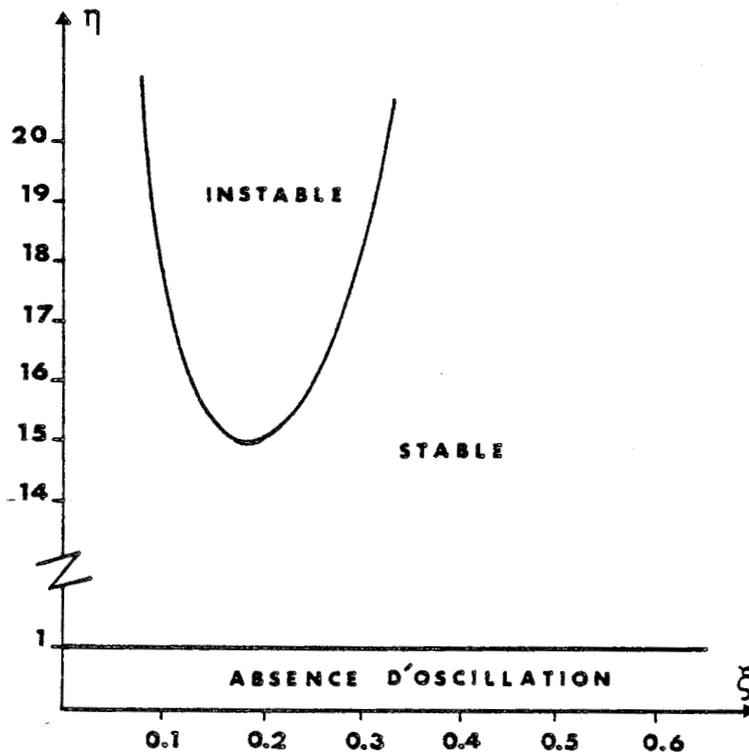


Figure III-9 : Diagramme de stabilité de la position d'équilibre (X_S^e, U^e, Y_2^e) .

Pour $\eta = \eta_c$, on résout l'équation caractéristique III.59 en remplaçant $2\xi^2(\eta-1)$ par $\xi(1+2\xi)(1+\eta\xi)$ et on obtient les solutions suivantes :

$$\begin{aligned} \lambda_1 &= -(1 + 2\xi) \\ \lambda_3^2 &= \pm i\omega_c \quad \text{avec} \quad \omega_c^2 = \xi \left(\frac{2 + \xi}{1 - 2\xi} \right) \end{aligned} \quad (\text{III.61})$$

L'étude de la stabilité linéaire du système différentiel (III.53) au voisinage du point d'équilibre montre donc l'apparition d'un régime périodique de pulsation ω_c pour les valeurs critiques de η déterminées d'après l'expression III.60. A ce stade, l'analyse de stabilité linéaire ne permet pas de prévoir si ce régime périodique est stable, il est nécessaire pour cela de procéder à une analyse de bifurcation (63,64) qui fait l'objet de nouvelles études.

Les courbes de la figure III-10, obtenues par résolution numérique du système différentiel III.53 illustrent le passage au régime instable pour différentes valeurs η voisines de η_c . Pour la valeur critique minimale ($\eta_c = 14,93$) la courbe théorique montre le régime périodique à la fréquence de 300 KHz, cette valeur coïncide avec celle obtenue à partir de l'expression III.61*. Lorsque le paramètre η est inférieur à η_c le fonctionnement du laser est stable, le régime oscillatoire est amorti. En revanche pour η supérieur à η_c , le comportement du laser devient instable.

En fait, les différents régimes analysés ci-dessus sont difficilement accessibles avec notre dispositif car la valeur critique minimale de η est obtenue d'après la relation III.42 pour une puissance IR élevée de l'ordre de 7W. L'étude expérimentale de la transition stable \leftrightarrow instable nécessiterait alors d'utiliser une autre technique de commutation de la puissance de pompe pour disposer d'une intensité IR plus importante à l'intérieur de la cavité SMM.

Il apparaît donc que les oscillations non amorties observées au début de cette étude sont à distinguer du régime oscillatoire mis en évidence à partir de l'analyse de stabilité précédente et afin de préciser l'origine des oscillations observées, nous avons entrepris une nouvelle étude expérimentale que nous présentons dans le paragraphe suivant.

* Dans l'échelle de temps usuelle, la valeur de la pulsation critique est égale à $\omega_c (\omega_n / 2Q_n)$.

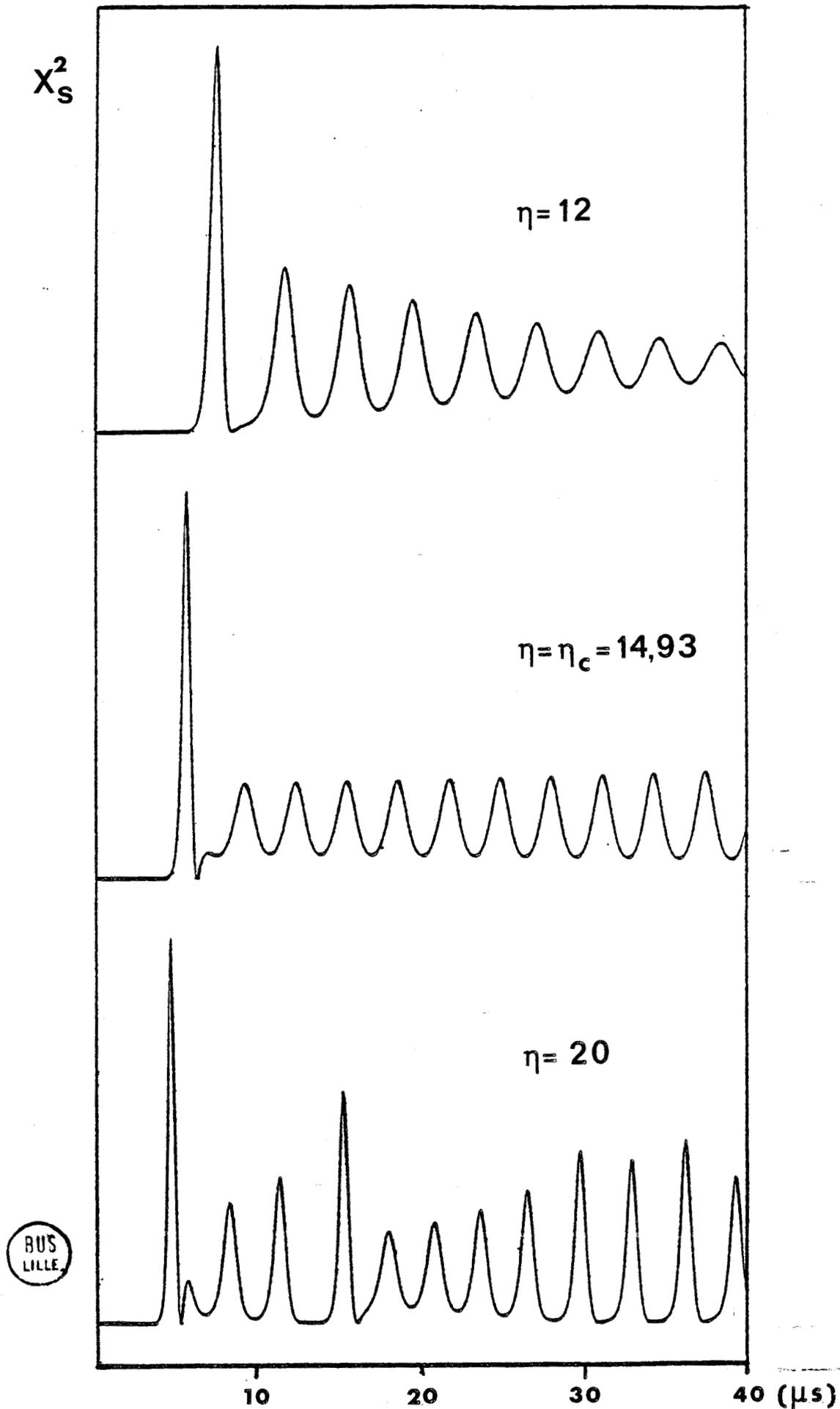


Figure III-10 : Illustration du passage au régime instable ; les courbes ont été calculées pour différentes valeurs du paramètre η , la valeur de ξ étant fixée à 0,18.

III-4-b) Etude expérimentale

Les paramètres expérimentaux qui déterminent les conditions d'observation du régime oscillatoire sont : la fréquence du rayonnement IR de pompe, la fréquence d'accord de la cavité SMM et de façon moins critique la pression du milieu amplificateur.

Ce comportement oscillatoire peut donc être distingué des effets transitoires décrits dans les parties précédentes (III-2 et III-3), peu dépendants de la fréquence IR de pompe. Notons de même que ceci nous conduit à différencier les oscillations non amorties mises en évidence expérimentalement du comportement oscillatoire établi auparavant à partir de l'analyse de stabilité linéaire.

Les oscillations sont observées uniquement dans le domaine des basses pressions : inférieures à 6 mTorr pour des conditions expérimentales accessibles avec notre montage (puissance de pompe inférieure au watt).

Le comportement oscillatoire n'est jamais observé lorsque la fréquence du laser de pompe est accordée pour obtenir une puissance SMM émise maximale. En revanche, les oscillations sont mises en évidence quand la fréquence IR est écartée de 10 MHz ou plus par rapport à la position précédente. La fréquence des oscillations (~ 150 -kHz) dépend peu de la fréquence de laser IR de pompe dans les limites de sa gamme d'accord (50 MHz).

La forme des oscillations dépend de la fréquence d'accord de la cavité SMM. La figure III-11 présente cet effet pour différentes longueurs de la cavité. Le régime oscillatoire est non amorti lorsque la cavité est accordée au centre du profil d'émission (enregistrement A). Par contre, une faible variation de longueur (0,5 μm) de part et d'autre de la position centrale entraîne un amortissement rapide des oscillations (enregistrements B et C).

Afin de préciser l'évolution du régime oscillatoire observée en fonction de la longueur de la cavité SMM, nous avons relevé l'allure du profil d'émission pour plusieurs valeurs de la fréquence IR. Deux

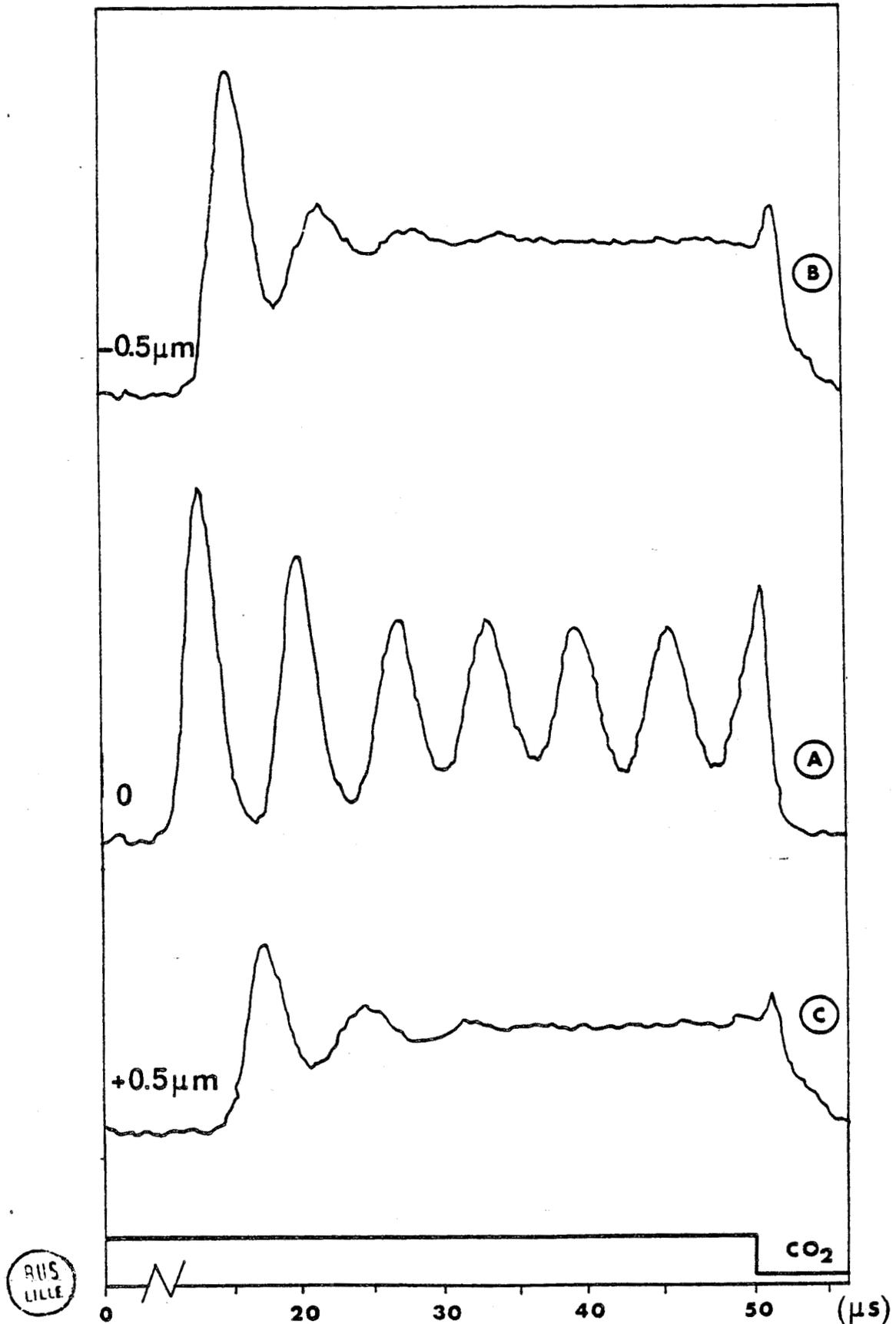


Figure III-11 : Evolution de la forme des oscillations pour différentes longueurs de la cavité SMM. Le pic qui apparaît lors de l'interruption du rayonnement IR de pompe sur les différents enregistrements est interprété dans la partie III-5. La pression du milieu amplificateur est de 4 mTorr, la puissance IR de 830 mW (émission à $742 \mu\text{m}$ de H_2COOH).

cas peuvent être distingués selon que la fréquence est en quasi-résonance ou hors résonance avec la transition rovibrationnelle $1 \rightarrow 2$ (cf Fig. III-12). Dans le premier cas, le profil d'émission du laser SMM présente une forme lorentzienne tronquée tandis que dans le second cas, l'écart à la résonance IR entraîne un dédoublement du profil d'émission. Le minimum central s'accroît avec l'écart à la résonance IR. Précisons que le dédoublement est aussi observé sur les autres résonances de la cavité SMM et apparaît uniquement dans un domaine de pressions inférieures à 10 mTorr.

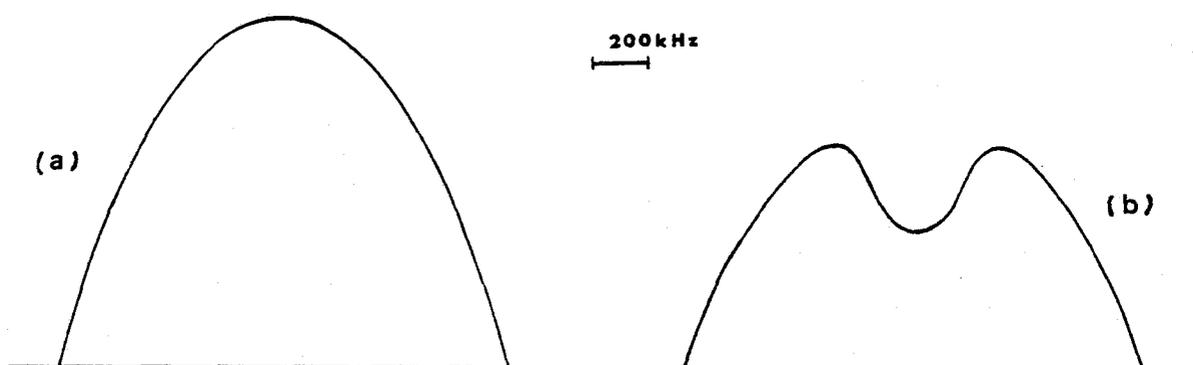


Figure III-12 : Représentation de l'évolution de la forme du profil d'émission : a) le rayonnement IR est quasi-résonnant avec la transition rovibrationnelle $1 \rightarrow 2$; b) la fréquence IR est écartée de 10 MHz par rapport à la position a). La pression du milieu amplificateur est de 4 mTorr.

BUS
LILLE

Ceci nous permet de définir les conditions d'apparition du régime oscillatoire : d'une part, les oscillations sont observées à basse pression, lorsque le profil d'émission du laser SMM présente un dédoublement qui apparaît si la fréquence IR n'est pas résonnante avec la transition $1 \rightarrow 2$. D'autre part, le régime oscillatoire est non amorti lorsque la fréquence de la cavité SMM est accordée au minimum central du profil d'émission et devient très vite amorti de part et d'autre de cette position.

III-4-c) Interprétation

Nous rappelons tout d'abord l'origine du dédoublement du profil d'émission et afin d'interpréter les effets observés en fonction de la fréquence d'accord de la cavité SMM, nous considérons le cas où deux émissions sont présentes dans la cavité.

Dédoublement du profil d'émission

Cet effet a été mis en évidence par plusieurs groupes^(65,66) et interprété au moyen d'un traitement d'équations de population par T.A. DE TEMPLE et E.J. DANIELEWICZ⁽⁶⁷⁾.

Le pompage IR, sélectif en vitesse, n'est généralement pas résonnant avec la transition rovibrationnelle $1 \rightarrow 2$. En tenant compte de l'onde retour IR à l'intérieur de la cavité SMM, l'inversion de population entre les deux niveaux SMM est donc réalisée pour les deux classes de vitesse v telles que :

$$\frac{v}{c} = \pm \frac{\omega_{12} - \omega_p}{\omega_p} \quad (\text{III.62})$$

Dans le domaine des basses pressions, la transition SMM présente un élargissement Doppler dominant, typiquement à 2 mTorr et pour une fréquence de 380 GHz, le rapport des largeurs Doppler et homogène est de l'ordre de $\Delta\omega_D/\Delta\omega_H \approx 8$. Les molécules de chaque classe de vitesse se déplacent à l'intérieur de la cavité où règne une onde stationnaire et il apparaît dans leurs référentiels propres deux pulsations $\omega_S^\pm = \omega_S (1 \pm \frac{v}{c})$ correspondant chacune à une composante (onde aller et retour) de l'onde stationnaire.

Dans le cas d'un élargissement Doppler dominant et pour des désaccords de la cavité SMM suffisamment importants ($|\omega_S - \omega_{23}| \gg \Delta\omega_H$), on peut considérer que chaque composante de l'onde stationnaire n'interagit qu'avec une classe de vitesse v (positive ou négative) telle que :

$$|\omega_S^\pm - \omega_{23}| < \Delta\omega_H \quad (\text{III.63})$$

Si $\omega_S - \omega_{23} > 0$ alors l'inégalité III.63 est vérifiée pour la classe de vitesse v qui a la même direction de propagation que la composante de l'onde stationnaire et inversement si $\omega_S - \omega_{23} < 0$ (cf Fig. III-13). Dans le premier cas ($\omega_S - \omega_{23} > 0$) l'écart à la résonance est minimal pour $\omega_S = \omega_{23} (1 + \frac{v}{c})$ tandis que dans le second cas ($\omega_S - \omega_{23} < 0$), il est minimal pour $\omega_S = \omega_{23} (1 - \frac{v}{c})$.

La courbe de gain du laser SMM présente donc deux maximums séparés de $2\omega_{23} \frac{v}{c}$ (cf Fig. III-13) soit, d'après (III.62) :

$$\Delta\omega_S = 2 \Delta\omega_p \frac{\omega_{23}}{\omega_p} \quad (\text{III.64})$$

où $\Delta\omega_S$ représente l'écart entre les pulsations des deux maximums du profil d'émission et $\Delta\omega_p$ l'écart à la résonance du rayonnement IR de pompe. Notons que les ordres de grandeurs mesurés pour $\Delta\omega_S$ (580 kHz) et $\Delta\omega_p$ (10 MHz) sont tout à fait compatibles avec l'expression (III.64).

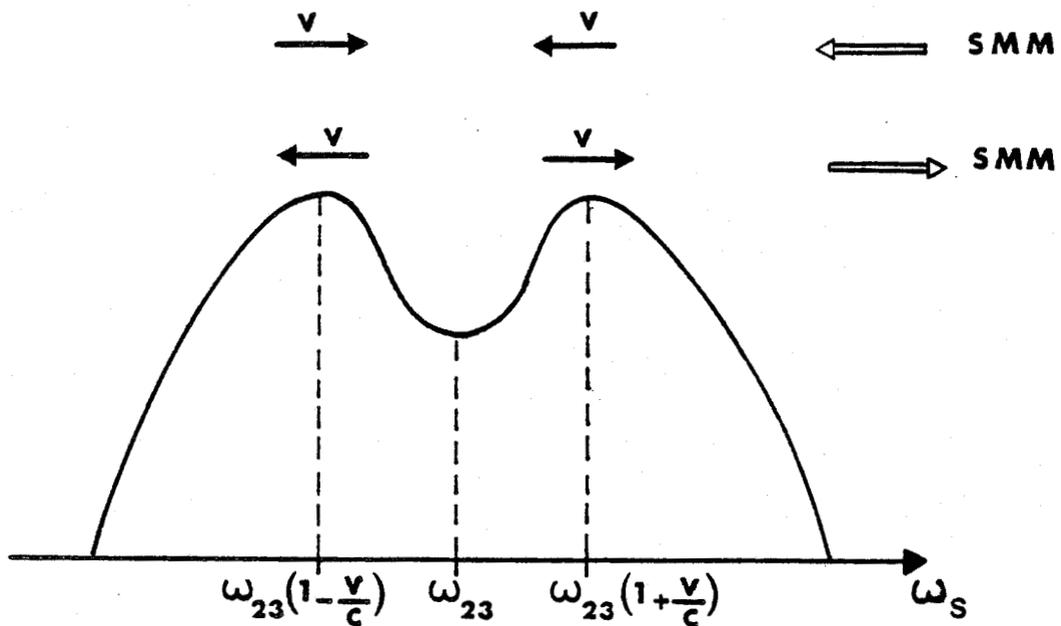


Figure III-13 : Contribution à la courbe de gain des deux classes de vitesse pompées selon la composante de l'onde stationnaire.

Compte tenu de l'allure de la courbe de gain, deux émissions de fréquences voisines de part et d'autre de la fréquence centrale $\omega_{23}/2\pi$ peuvent exister simultanément à l'intérieur de la cavité SMM ; si de plus ce mode de fonctionnement du laser est stable alors le comportement oscillatoire non amorti peut être interprété comme le résultat du battement de ces deux émissions de fréquences voisines. Précisons ce point en utilisant les résultats de la théorie de LAMB développée dans le cas où deux modes sont présents à l'intérieur de la cavité laser.

Conditions de stabilité

Dans la théorie du laser de LAMB^(40,41), l'évolution de l'intensité de chacun des champs est décrite par les équations suivantes :

$$\dot{I}_1 = 2(\alpha_1 - \theta_{12} I_2) I_1 - 2\beta_1 I_1^2 \quad (\text{III.65})$$

$$\dot{I}_2 = 2(\alpha_2 - \theta_{21} I_1) I_2 - 2\beta_2 I_2^2 \quad (\text{III.66})$$

où $\alpha_1(\alpha_2)$ et $\beta_1(\beta_2)$ représentent respectivement les gains linéaires et les paramètres d'auto-saturation des champs d'intensité $I_1(I_2)$ (§III-2) ; θ_{12} et θ_{21} sont les paramètres de saturation croisée qui s'expriment en fonction des formes lorentziennes caractérisant l'écart à la résonance des deux champs de pulsations ω_1 et ω_2 . La signification physique des paramètres de saturation croisée apparaît clairement dans les équations (III.65) et (III.66) : le paramètre θ_{12} rend compte de la diminution du gain linéaire correspondant au champ d'intensité I_1 provoquée par la saturation du champ d'intensité I_2 et inversement pour le paramètre θ_{21} .

Les équations (III.65) et (III.66) admettent plusieurs solutions stationnaires qui correspondent à un fonctionnement du laser sur une seule émission lorsque l'intensité stationnaire de l'un des champs est nulle ou un fonctionnement sur deux émissions si l'intensité stationnaire de chacun des champs est non nulle.

Afin de déterminer les conditions de stabilité des différents fonctionnements possibles du laser, on procède alors comme précédemment

à une analyse de stabilité linéaire des positions d'équilibre. Les conditions de stabilité ainsi déterminées par LAMB⁽⁴¹⁾ sont reportées dans le tableau ci-dessous :

I_1	I_2	Conditions de stabilité
0	0	$\alpha_1 < 0, \alpha_2 < 0$
$\frac{\alpha_1}{\beta_1}$	0	$\alpha_1 > 0, \alpha'_2 < 0$
0	$\frac{\alpha_2}{\beta_2}$	$\alpha_2 > 0, \alpha'_1 < 0$
$\frac{\alpha'_1/\beta_1}{1-C}$	$\frac{\alpha'_2/\beta_2}{1-C}$	$\alpha'_1 > 0, \alpha'_2 > 0, C < 1$
I_1	$\frac{\alpha_1 - \beta_1 I_1}{\theta_{12}}$	$C = 1$

Dans ce tableau, $\alpha'_1 = \alpha_1 - \theta_{21}(\alpha_2/\beta_2)$ représente le gain linéaire effectif pour le champ d'intensité I_1 ; c'est une détermination du gain linéaire quand seul le champ I_2 est établi ($I_2 = \alpha_2/\beta_2$) ; de façon analogue, α'_2 est défini par : $\alpha'_2 = \alpha_2 - \theta_{12}(\alpha_1/\beta_1)$. Le paramètre $C = \theta_{12}\theta_{21}/\beta_1\beta_2$ caractérise le couplage entre les deux émissions, dans notre situation ce paramètre dépend fortement de l'écart à la résonance IR qui détermine le recouvrement des deux composantes de la courbe de gain.

Discussion

Nous précisons à présent la signification physique des conditions de stabilité reportées dans le tableau précédent en considérant d'abord le cas où les gains linéaires α_1 et α_2 ne sont pas tous deux positifs.

Lorsque les gains linéaires α_1 et α_2 sont négatifs, les pertes de la cavité sont prépondérantes et il est clair que dans ce cas, aucune oscillation ne peut s'établir. En revanche, quand l'un des deux gains linéaires est positif, seule l'émission correspondante peut s'établir, son intensité en régime stationnaire est égale à α_i/β_i où $i = 1, 2$ si respectivement $\alpha_1 > 0$ ou $\alpha_2 > 0$. Expérimentalement, ceci est réalisé quand les deux maximums de la courbe de gain sont suffisamment séparés (par rapport à la largeur de la courbe de réponse de la cavité) et que la cavité est accordée à la fréquence de l'un ou l'autre des deux maximums.

Analysons maintenant les divers fonctionnements stables qui apparaissent lorsque les gains linéaires α_1 et α_2 sont positifs. Les effets décrits résultent de la compétition des deux émissions. Distinguons trois cas selon les valeurs prises par les gains effectifs α'_i :

- Si uniquement l'un des gains effectifs est négatif alors l'émission correspondante sera dominée puis interrompue par l'autre et le battement entre les deux émissions sera très vite amorti. Cet effet est observé expérimentalement quand la fréquence d'accord de la cavité est décalée de la fréquence centrale du profil d'émission (enregistrements B et C). Notons que dans ce cas, le paramètre de couplage peut être inférieur à un.

- Si le gain effectif de chaque émission est négatif, on a nécessairement $C > 1$ (couplage fort) et dans ce cas, les deux émissions ne peuvent pas osciller simultanément ; le laser présente alors un comportement bistable : les conditions initiales favorisent l'une ou l'autre des émissions (cf Fig. III-14a) et aucune oscillation ne sera détectée sur la puissance de sortie.

- Dans le cas d'une faible saturation croisée où le gain linéaire effectif de chaque émission est positif on a nécessairement $C < 1$ (couplage faible) et deux émissions peuvent exister simultanément à l'intérieur de la cavité laser (cf Fig. III-14b). Ce comportement est obtenu expérimentalement lorsque la fréquence d'accord de la cavité coïncide avec la fréquence centrale du profil d'émission du laser (enregistrement A) ; la puissance détectée présente alors un comportement oscillatoire non amorti.

Notons enfin le cas du couplage neutre ($C = 1$) où l'ensemble des solutions vérifiant $I_2 = -(\beta_1/\theta_{12}) I_1 + (\alpha_1/\theta_{12})$ est stable. Pratiquement, cette situation obtenue pour une seule valeur du paramètre de couplage apparaît difficilement réalisable.

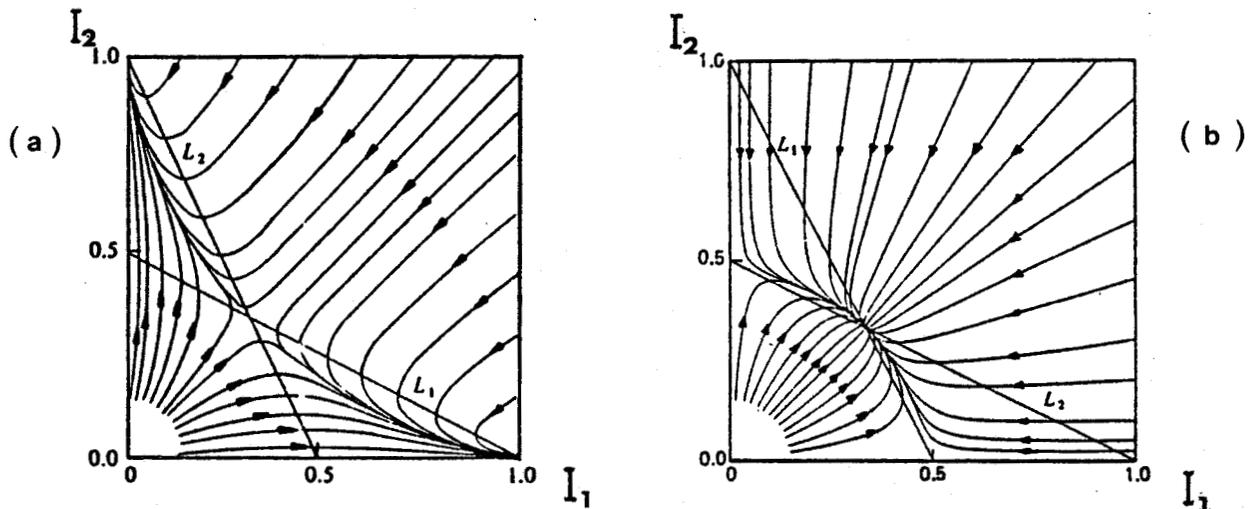


Figure III-14 : Diagrammes montrant deux modes de fonctionnement stable du laser, d'après LAMB⁽⁴¹⁾. Les droites L_1 et L_2 représentent respectivement les valeurs stationnaires non nulles des équations (III.65) et (III.66)

a) cas du couplage fort ($\alpha_1=\alpha_2=1, \beta_1=\beta_2=1, \theta_{12}=\theta_{21}=2$) il y a deux positions d'équilibre stable : $(I_1=\alpha_1/\beta_1, I_2=0), (I_1=0, I_2=\alpha_2/\beta_2)$.

b) cas du couplage faible ($\alpha_1=\alpha_2=1, \beta_1=\beta_2=2, \theta_{12}=\theta_{21}=1$), il y a une position d'équilibre stable $(I_1=(\alpha'_1/\beta_1)/(1-C), I_2=(\alpha'_2/\beta_2)/(1-C))$.

L'analyse de stabilité des équations d'évolution (III.65) et (III.66) montre donc que le régime oscillatoire non amorti, résultant du battement des deux émissions, est obtenu dans le cas d'un couplage faible ($C < 1$), lorsque le gain effectif de chaque émission est positif ; le comportement oscillatoire amorti apparaît dès que l'un des gains effectifs devient négatif c'est à dire pour une faible variation de la fréquence d'accord de la cavité à partir de la fréquence centrale du profil d'émission.

Après avoir analysé les différents effets transitoires observés lors de l'établissement de l'émission laser, nous nous proposons au cours de la partie suivante de préciser le comportement du laser SMM au moment de l'interruption de la puissance IR de pompe.

III - 5) EFFET TRANSITOIRE OBSERVE A L'ARRET DE LA PUISSANCE DE POMPE

Lors de l'interruption du rayonnement IR de pompe, la puissance SMM émise présente dans certaines conditions expérimentales que nous précisons ci-dessous une suroscillation. Un comportement analogue avait été observé par A.A. MANENKOV *et al*⁽⁶⁸⁾ sur un maser paramagnétique à trois niveaux dont on commute la puissance de pompe. Dans le domaine MW, P. GLORIEUX et B. MACKE⁽⁶⁹⁾ ont étudié des effets transitoires similaires, dans leurs expériences c'est sur l'absorption d'un champ irradiant continuellement le milieu que l'on observe les transitoires induits par la modulation du rayonnement de pompe.

III-5-a) Mise en évidence expérimentale

La suroscillation observée lors de l'interruption du pompage IR apparaît à forte puissance de pompe et uniquement dans le domaine des basses pressions : inférieures à 7 mTorr (cf Fig.III-15). De plus, elle est mise en évidence pour une large gamme d'accord des fréquences IR et SMM.

Ces conditions expérimentales sont comparables à celles déterminées au cours de l'étude du régime non linéaire où l'établissement de l'émission SMM présente de même une suroscillation. Elles montrent l'importance de la saturation IR et SMM.

Notons cependant que les effets observés à l'arrêt du pompage résultent de la commutation simultanée des rayonnements IR et SMM ; ils sont donc à distinguer des effets mis en évidence lors de l'établissement de l'émission SMM où les phénomènes transitoires IR et SMM apparaissent à des instants différents.

III-5-b) Interprétation

Au cours de la partie III-3, nous avons établi un modèle à deux niveaux d'énergie en considérant notamment que les effets transitoires IR sont amortis au moment de l'établissement de l'émission SMM qui s'effectue toujours avec un délai supérieur à 5 μ s après la commutation du rayonnement IR de pompe. Ce modèle ne peut évidemment pas être

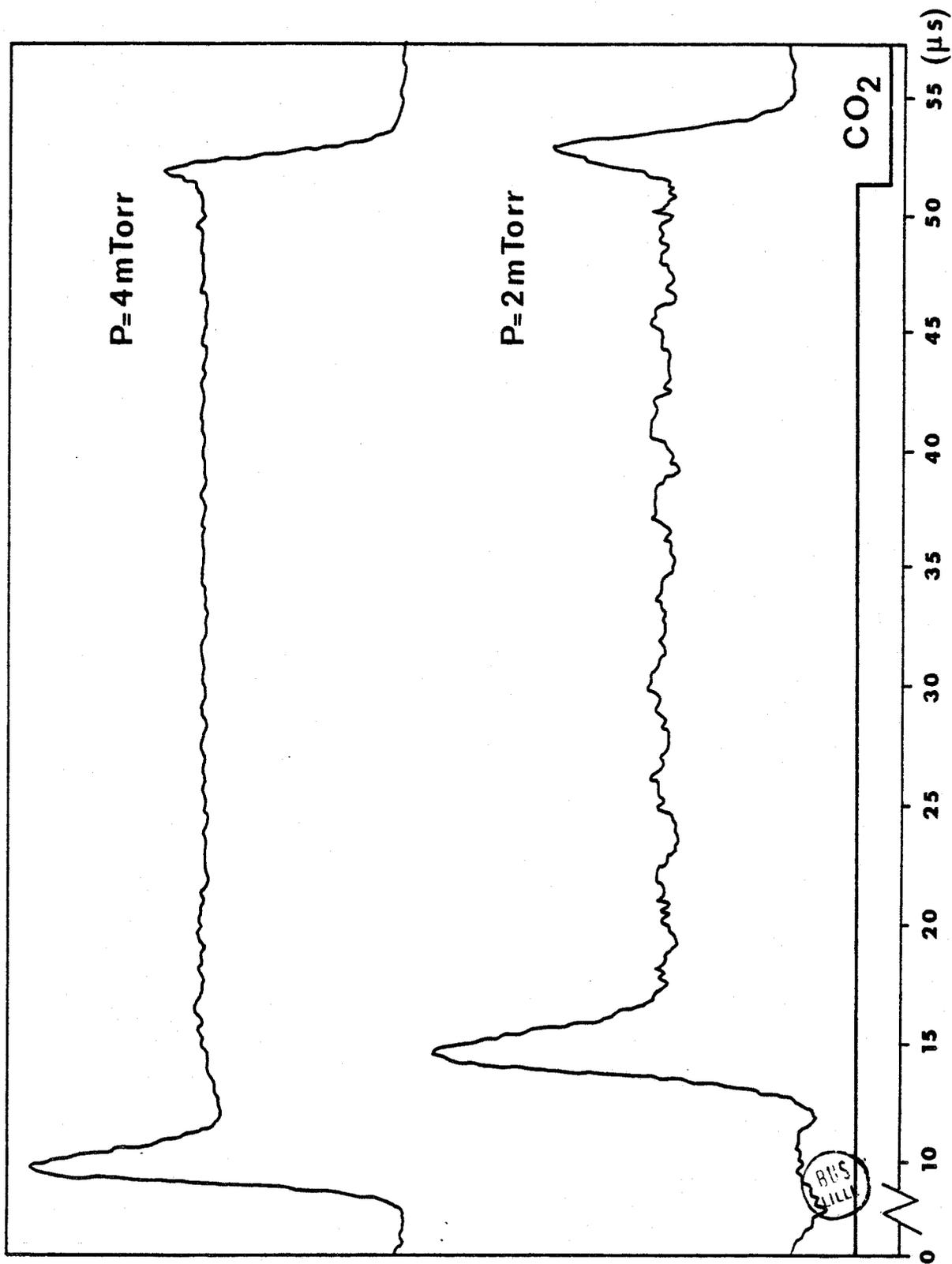


Figure III-15 : Signaux transitoires observés à l'arrêt de la puissance de pompe ; les enregistrements ont été obtenus pour une puissance de pompe de 830 mW (émission à 742 μm de H^{12}COOH).

appliqué ici. Il est alors nécessaire de considérer les trois niveaux d'énergie couplés par les champs IR et SMM.

Afin de prendre en compte les phénomènes liés au couplage des transitions IR et SMM, nous adoptons une approche simplifiée du modèle à trois niveaux d'énergie : nous négligeons d'une part la dépendance spatiale des champs IR et SMM et d'autre part la dépendance en vitesse en considérant uniquement les molécules qui contribuent à l'émission SMM. Enfin, les effets transitoires observés lors de la commutation de la puissance de pompe étant peu dépendants des fréquences d'accord IR et SMM, nous nous limitons au cas physiquement intéressant où ces deux rayonnements sont parfaitement résonnants.

Dans le formalisme de la matrice densité, l'évolution du milieu amplificateur est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] + \left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{\text{relaxation}} \quad (\text{III.67})$$

avec $H = H_0 + V(t)$

où H représente le hamiltonien en présence des champs IR et SMM, H_0 étant le hamiltonien en absence d'interaction et $V(t) = -\mu\vec{E}(t)$ le hamiltonien de perturbation.

Dans l'approximation des collisions fortes, la relaxation est définie par un taux unique (γ) et s'exprime simplement par :

$$\left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{\text{relaxation}} = -\gamma (\rho - \rho^0) \quad (\text{III.68})$$

où ρ^0 est la matrice densité à l'équilibre thermodynamique.

Les champs IR et SMM sont représentés globalement par :

$$\vec{E}(t) = E_p(t) \cos \omega_{12}t + E_s(t) \cos \omega_{23}t \quad (\text{III.69})$$

Afin d'éliminer les termes rapidement variables, nous écrivons les éléments non diagonaux de la matrice densité sous la forme :

$$\begin{aligned}
 \rho_{12}(t) &= \tilde{\rho}_{12}(t) e^{i\omega_{12}t} \\
 \rho_{13}(t) &= \tilde{\rho}_{13}(t) e^{i(\omega_{12}-\omega_{23})t} \\
 \rho_{32}(t) &= \tilde{\rho}_{32}(t) e^{i\omega_{23}t}
 \end{aligned}
 \tag{III.70}$$

L'équation d'évolution de la matrice densité (III.67) s'exprime alors sous la forme développée suivante :

$$\begin{aligned}
 \dot{\rho}_{22}-\dot{\rho}_{11} &= -\gamma(\rho_{22}-\rho_{11}) - \gamma\rho_{11}^0 - \frac{i\mu_r E_S}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{23}-\tilde{\rho}_{32}) + \frac{i\mu_V E_P}{\hbar} (\tilde{\rho}_{12}-\tilde{\rho}_{21}) \\
 \dot{\rho}_{22}-\dot{\rho}_{33} &= -\gamma(\rho_{22}-\rho_{33}) - \frac{i\mu_r E_S}{\hbar} (\tilde{\rho}_{23}-\tilde{\rho}_{32}) + \frac{i\mu_V E_P}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{12}-\tilde{\rho}_{21}) \\
 i(\dot{\tilde{\rho}}_{12}-\dot{\tilde{\rho}}_{21}) &= -i\gamma(\tilde{\rho}_{12}-\tilde{\rho}_{21}) + \frac{\mu_r E_S}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{13}+\tilde{\rho}_{31}) - \frac{\mu_V E_P}{\hbar} (\rho_{22}-\rho_{11}) \\
 i(\dot{\tilde{\rho}}_{23}-\dot{\tilde{\rho}}_{32}) &= -i\gamma(\tilde{\rho}_{23}-\tilde{\rho}_{32}) + \frac{\mu_r E_S}{\hbar} (\rho_{22}-\rho_{33}) - \frac{\mu_V E_P}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{13}+\tilde{\rho}_{31}) \\
 \dot{\tilde{\rho}}_{13}+\dot{\tilde{\rho}}_{31} &= -\gamma(\tilde{\rho}_{13}+\tilde{\rho}_{31}) - \frac{i\mu_r E_S}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{12}-\tilde{\rho}_{21}) + \frac{i\mu_V E_P}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{23}-\tilde{\rho}_{32}) \\
 i(\dot{\tilde{\rho}}_{13}-\dot{\tilde{\rho}}_{31}) &= -i\gamma(\tilde{\rho}_{13}-\tilde{\rho}_{31}) + \frac{\mu_r E_S}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{12}+\tilde{\rho}_{21}) - \frac{\mu_V E_P}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{23}+\tilde{\rho}_{32}) \\
 \dot{\tilde{\rho}}_{12}+\dot{\tilde{\rho}}_{21} &= -\gamma(\tilde{\rho}_{12}+\tilde{\rho}_{21}) - \frac{i\mu_r E_S}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{13}-\tilde{\rho}_{31}) \\
 \dot{\tilde{\rho}}_{23}+\dot{\tilde{\rho}}_{32} &= -\gamma(\tilde{\rho}_{23}+\tilde{\rho}_{32}) + \frac{i\mu_V E_P}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{13}-\tilde{\rho}_{31})
 \end{aligned}$$

A la résonance ces équations différentielles se décomposent en deux sous systèmes indépendants dont seul celui formé des cinq premières équations contribue à décrire l'évolution de la polarisation SMM qui intervient comme terme source dans l'équation de champ (III.32). On effectue à présent le passage à des quantités sans dimension selon la méthode introduite précédemment (§III-3-d) et on obtient :

$$\begin{aligned}
 \dot{U} &= -\xi \left(U + X_S Y_S - \frac{1}{2} X_P Y_P \right) \\
 \dot{W} &= -\xi \left(W - W^0 - X_P Y_P + \frac{1}{2} X_S Y_S \right) \\
 \dot{Y}_P &= -\xi \left(Y_P - \frac{1}{2} X_S Y_{Sp} + X_P W \right) \\
 \dot{Y}_S &= -\xi \left(Y_S - X_S U + \frac{1}{2} X_P Y_{Sp} \right) \\
 \dot{Y}_{Sp} &= -\xi \left(Y_{Sp} + \frac{1}{2} X_S Y_P - \frac{1}{2} X_P Y_S \right)
 \end{aligned}
 \quad \left. \vphantom{\begin{aligned} \dot{U} \\ \dot{W} \\ \dot{Y}_P \\ \dot{Y}_S \\ \dot{Y}_{Sp} \end{aligned}} \right\} \quad \text{(III.71)}$$

où les quantités sans dimension qui apparaissent dans le système différentiel (III.71), sont analogues à celles introduites dans le modèle à deux niveaux d'énergie* :

$$\begin{aligned}
 U &= \frac{\rho_{22} - \rho_{33}}{N^0} & W &= \frac{\rho_{22} - \rho_{11}}{N^0} \\
 Y_S &= \frac{i(\tilde{\rho}_{23} - \tilde{\rho}_{32})}{N^0} & Y_P &= \frac{i(\tilde{\rho}_{12} - \tilde{\rho}_{21})}{N^0} \\
 Y_{Sp} &= \frac{\tilde{\rho}_{13} + \tilde{\rho}_{31}}{N^0} \\
 W^0 &= \frac{(\rho_{22} - \rho_{11})^0}{N^0}
 \end{aligned}$$

Compte tenu des hypothèses précédentes, ces quantités sont indépendantes de la coordonnée axiale z et rapportées simplement à l'inversion de population N^0 réalisée en absence de champ. U et W représentent respectivement la différence de population entre les niveaux connectés par les rayonnements SMM et IR ; Y_S et Y_P caractérisent respectivement le gain du milieu à la fréquence SMM et son absorption à la fréquence IR ; Y_{Sp} est le seul terme relatif à un processus à deux photons, il caractérise la cohérence entre les niveaux 1 et 3

* Sans risque de confusion possible, nous avons omis l'indice 2 utilisé précédemment pour distinguer la partie imaginaire de la polarisation.

induit par les deux rayonnements ; W^0 représente la différence de population entre les niveaux connectés par le rayonnement IR à l'équilibre thermodynamique, rapportée à N^0 .

Le système différentiel (III.71) permet donc de décrire l'évolution de la polarisation à la fréquence SMM en considérant le couplage des deux transitions IR et SMM. Afin de rendre compte du comportement transitoire du laser, ce système doit être complété de l'équation III.32 que nous rappelons ci-dessous :

$$\dot{X}_S = -X_S + \eta Y_S \quad (\text{III.32})$$

L'origine de la suroscillation observée à l'interruption de la puissance de pompe peut être précisée à partir de l'équation d'évolution de Y_S qui intervient comme terme source dans l'équation III.32. Pour cela, considérons tout d'abord la valeur d'équilibre de la polarisation SMM, atteinte avant l'interruption de la puissance de pompe, soit :

$$Y_S^e = U^e X_S^e - \frac{1}{2} X_p Y_{Sp}^e \quad (\text{III.72})$$

La commutation du pompage IR étant effectuée en un temps très court (<300 ns) par rapport au temps d'évolution des différentes variables : champ SMM, différences de population et polarisations nous pouvons considérer que, pendant un court moment suivant l'interruption de la puissance de pompe, \dot{Y}_S est donné par :

$$\dot{Y}_S = -\xi (Y_S^e - U^e X_S^e) \quad (\text{III.73})$$

soit d'après l'expression (III.72) :

$$\dot{Y}_S = \frac{\xi}{2} X_p Y_{Sp}^e \quad (\text{III.73})$$

Les paramètres ξ et X_p étant positifs, le signe de \dot{Y}_S dépend uniquement du signe de Y_{Sp}^e ; si cette quantité est positive alors \dot{Y}_S et donc \dot{X}_S sont positifs dans ce cas l'interruption du pompage IR conduit

à une augmentation de la puissance SMM émise. A l'équilibre, le terme de cohérence à deux photons s'exprime simplement en fonction des champs IR et SMM :

$$y_{Sp}^e = \frac{2X_S^e}{3\eta X_p} \left(\frac{X_p^2}{2} - 1 - (X_S^e)^2 \right) \quad (\text{III.74})$$

Nous pouvons alors préciser les conditions d'apparition de la suroscillation observée à l'arrêt de la puissance de pompe :

$$\frac{X_p^2}{2} > 1 + (X_S^e)^2 \quad (\text{III.75})$$

Cette relation montre que la suroscillation apparaît à forte saturation IR en accord avec les résultats expérimentaux. De plus les considérations précédentes permettent d'affirmer que l'effet transitoire observé à l'arrêt de la puissance de pompe résulte d'un processus à deux photons IR et SMM.

Le système différentiel (III.71) peut être intégré numériquement. Pour ce calcul, il est cependant nécessaire de déterminer un paramètre η effectif compte tenu du modèle présenté ici qui néglige toute dépendance en vitesse et donc l'élargissement Doppler de la transition IR. Le but de cette partie étant de déterminer l'origine de la suroscillation observée à l'interruption de la puissance de pompe, nous avons entrepris l'intégration numérique du système différentiel (III.71) pour différentes valeurs de X_p en considérant simplement un paramètre η moyen ($\eta = 4$). La figure III-16 présente les courbes ainsi calculées, elles montrent clairement l'apparition de la suroscillation à l'arrêt de la puissance de pompe dans la zone de saturation IR. Les valeurs de X_p choisies permettent de vérifier la condition d'apparition de la suroscillation (III.75), ce qui confirme l'analyse précédente.

L'analyse de stabilité présentée dans le paragraphe III-4-a peut être généralisée au modèle à trois niveaux d'énergie ; notons cependant que dans ce cas, la détermination des conditions de stabilité à partir du critère de ROUTH-HURWITZ⁽⁶²⁾ conduit à des expressions analytiques compliquées dont l'interprétation physique est difficile.

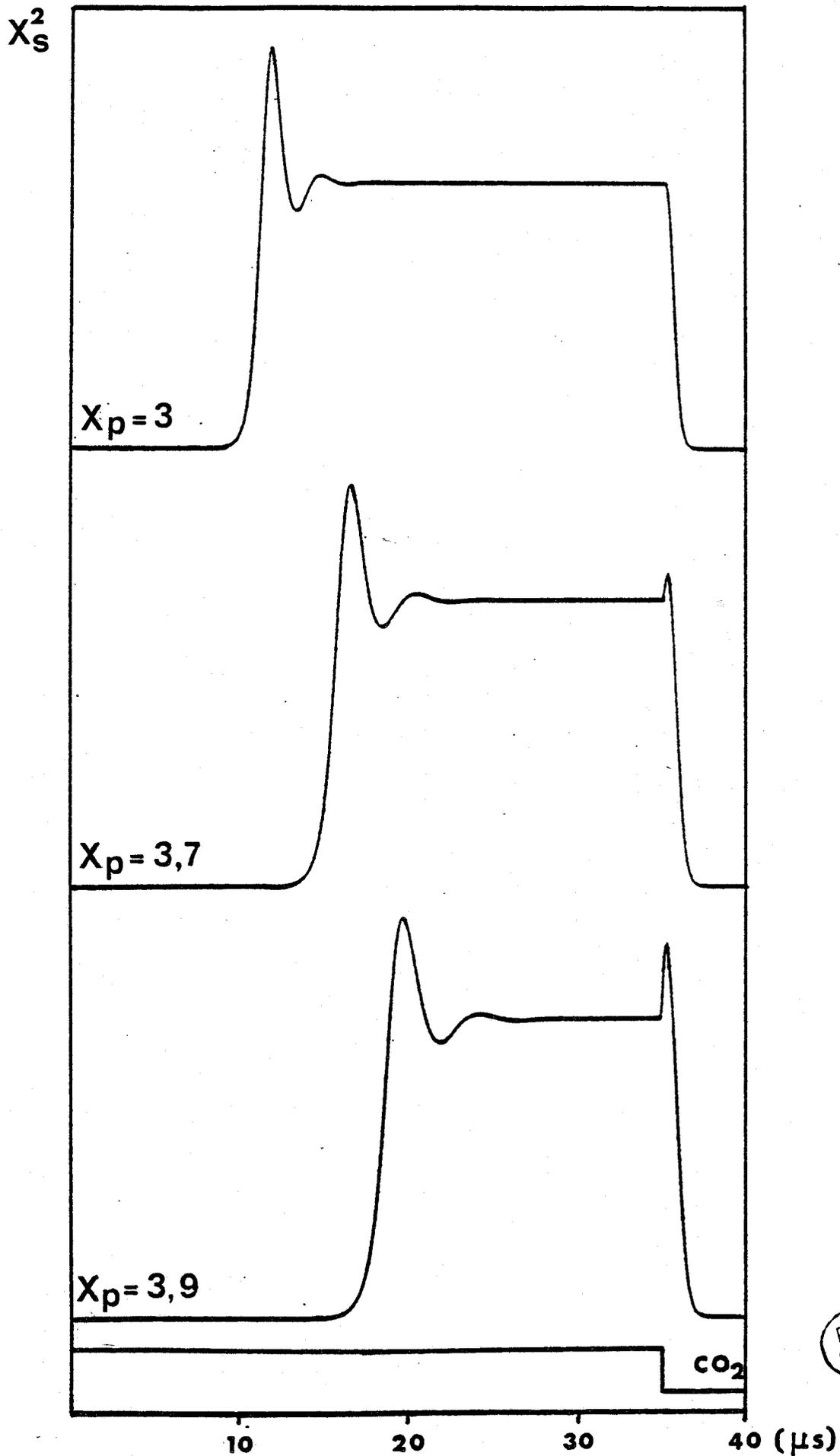


Figure III-16 : Effet transitoire à l'arrêt de la puissance de pompe. Les courbes ont été obtenues par intégration numérique du système différentiel III.71, pour différentes valeurs du paramètre X_p et pour $\eta = 4$.

BUS
LILLE

III - 6) OUVERTURE VERS DE NOUVELLES ETUDES

Nous avons décrit dans les parties précédentes divers comportements du laser SMM observés lors de la commutation de la puissance IR. L'analyse des différents effets a été entreprise dans le cadre d'une théorie semi-classique où l'émission thermique joue le rôle de terme source mais nous n'avons pas considéré plus en détail l'influence du champ $X_S(0)$ à l'instant initial.

Celle-ci peut être observée expérimentalement de la façon suivante : en rétablissant la puissance de pompe après un temps d'interruption (ΔT) tel que le champ SMM dû à la première excitation ne soit pas totalement amorti. On modifie alors la valeur et la distribution statistique du champ initial qui est à l'origine de la montée en oscillation du laser SMM au cours de la seconde impulsion. Dans ce cas, l'émission laser est déclenchée non pas sur le rayonnement thermique comme dans les parties précédentes mais à partir du rayonnement cohérent résiduel de la première émission.

III-6-a) Influence sur le temps de délai

L'augmentation de l'intensité initiale se manifeste notamment sur le délai (T_D) de la seconde montée en oscillation du laser SMM. La figure III-17 illustre cet effet, elle représente pour différentes pressions l'évolution de T_D en fonction du temps d'interruption de la puissance de pompe (ΔT) séparant deux impulsions. L'examen de la courbe obtenue à haute pression (22 mTorr) montre que l'on peut distinguer trois zones :

- pour des valeurs de ΔT supérieures à 10 μs , le délai est indépendant du temps d'interruption et dans ce cas, les deux émissions ne sont pas corrélées, chacune s'établissant à partir du rayonnement thermique (§III-3-h).

- ° lorsque ΔT est inférieur à 5 μs , l'augmentation de la valeur du champ initial conduit à une décroissance linéaire du délai en fonction de ΔT . Les deux émissions ne sont alors plus indépendantes.

- les valeurs de ΔT comprises entre 5 et 10 μs correspondent à la zone de transition entre les deux régimes : l'amplitude du rayonnement cohérent dû à la première émission SMM est comparable à celle du rayonnement thermique.

La pente des courbes varie avec la pression. Aux pressions inférieures à 10 mTorr, on n'observe que la zone linéaire pour des valeurs de ΔT inférieures à 15 μs . Notons qu'à basse pression, la faible décroissance du rayonnement cohérent de la première émission permet de modifier le champ initial de la seconde émission après des temps d'interruption de la puissance de pompe atteignant 15 μs . Dans ces conditions l'intensité initiale est nettement inférieure au minimum détectable.

Les courbes obtenues montrent donc clairement que l'augmentation de l'intensité initiale due à la première émission SMM provoque une diminution du délai observé lors d'une seconde excitation et que ce délai varie linéairement avec le temps d'interruption. Cette variation peut s'interpréter qualitativement à partir de la forme simple du délai établie d'après l'expression III.2 et en considérant que l'intensité en régime stationnaire $I_S(\infty) = \frac{\alpha}{\beta}$ est très supérieure à l'intensité initiale ($\alpha/\beta I_S(0) \gg 1$). On obtient alors :

$$T_D = \frac{1}{2\alpha} \text{Log} \left(\frac{1}{9} \frac{\alpha}{\beta I_S(0)} \right) \quad (\text{III.76})$$

Dans la zone où les deux émissions sont dépendantes, $I_S(0)$ est déterminée essentiellement par le rayonnement SMM présent dans la cavité après une première excitation.

Pour des temps d'interruption de la puissance de pompe supérieurs au temps d'arrêt (T_A) de la première émission SMM, la valeur de l'intensité SMM présente dans la cavité : I_1 est proche du minimum détectable et nous supposons alors que cette intensité décroît suivant une loi exponentielle de constante de temps τ_0 . Dans cette hypothèse le délai varie linéairement en fonction de ΔT en suivant la loi

$$T_D = \frac{1}{2\alpha} \left(\frac{\Delta T}{\tau_0} + C \right) \quad (\text{III.77})$$

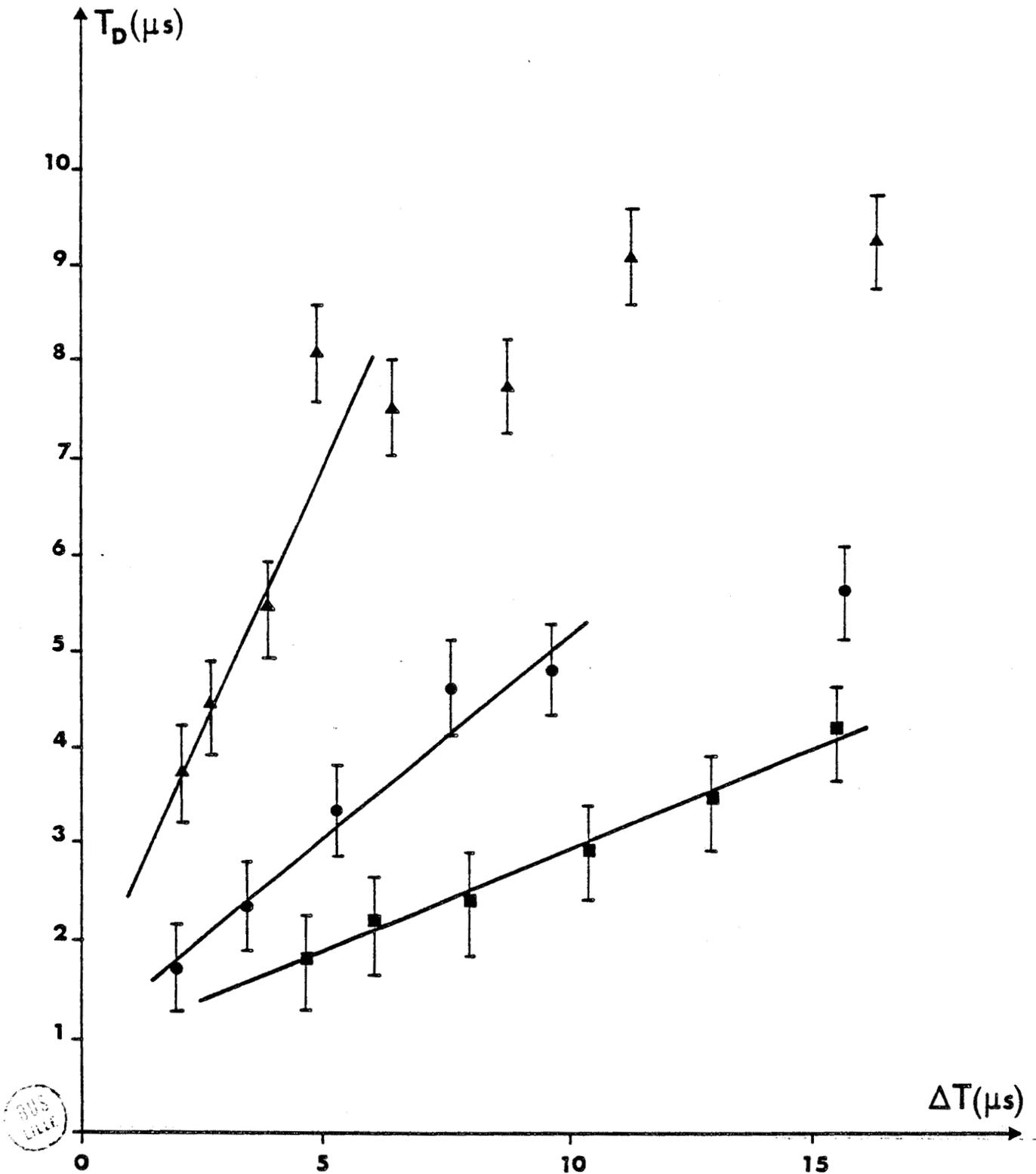


Figure III-17 : Mise en évidence de l'influence d'une augmentation de l'intensité initiale sur le délai pour différentes valeurs de la pression du milieu amplificateur (\blacktriangle : 22 mTorr, \bullet : 11 mTorr, \blacksquare : 7 mTorr).

où C est une constante qui dépend de l'intensité I_1 choisie.

L'hypothèse d'une décroissance exponentielle du champ SMM présent à l'intérieur de la cavité est une approximation grossière qui ne prend pas en compte notamment l'influence des effets de cohérence à deux photons mis en évidence lors de l'interruption de la puissance de pompe et l'interprétation proposée ici est essentiellement qualitative.

La dépendance des pentes des courbes de la figure III-17 avec la pression est due à la relaxation rotationnelle qui provoque un retour rapide à l'équilibre thermodynamique du milieu actif. En effet, la constante de temps τ_0 caractéristique de la durée de vie des photons dans la cavité est fonction à la fois de l'amortissement de la polarisation SMM et du coefficient de qualité.

III-6-b) Influence sur la statistique

Les propriétés statistiques de l'émission laser ont été étudiées notamment par F.T. ARECCHI et V. DEGIORGIO⁽⁷⁰⁾ dans le cas d'un laser HeNe "Q switché". Ces deux auteurs ont observé des fluctuations de l'émission en régime de faible saturation et ils ont déterminé expérimentalement la distribution des photons à l'intérieur de la cavité pour différentes valeurs du délai.

Dans le cas du laser SMM, les effets sont analogues : en régime de faible saturation, on observe des fluctuations du délai bien que le signal transitoire d'établissement de l'émission SMM conserve la même forme ; l'importance de ces fluctuations augmente avec le désaccord de la cavité. Ce comportement peut être décrit qualitativement à partir de considérations simples :

- L'influence des fluctuations du nombre initial de photons est importante lorsque le laser est en dessous du seuil d'oscillation et devient relativement faible lors de la montée en oscillation du laser (pour des temps supérieurs à T_D). En négligeant la distribution statistique du champ au-dessus du seuil, on peut considérer qu'en régime de faible saturation le comportement du laser est décrit par la loi de

variation temporelle établie dans la théorie de LAMB (expression III.2) où cette fois l'intensité initiale $I_S(0)$ est considérée comme une variable aléatoire qui décrit la distribution statistique du champ initial. Dans cette hypothèse, la montée en oscillation du laser conserve donc une forme apériodique mais qui apparaît de façon aléatoire selon les valeurs de l'intensité initiale.

- L'augmentation des fluctuations du délai avec le désaccord de la cavité peut être interprété d'après l'expression (III.77) où il apparaît que pour un faible gain (cavité désaccordée), les fluctuations de $I_S(0)$ modifient plus fortement les valeurs du délai.

En réalisant des séquences à deux impulsions, on modifie la distribution statistique de l'intensité initiale. En effet, dans le cas où l'émission laser s'établit à partir du rayonnement thermique, la probabilité d'avoir n photons à l'instant initial est donnée par la statistique de Bose-Einstein soit :

$$P_n = \exp\left(-\frac{n\hbar\omega}{kT}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{kT}\right)\right] \quad (\text{III.78})$$

où ω est la pulsation du rayonnement, k la constante de Boltzmann et T la température absolue.

Par contre, dans la zone où les deux émissions sont dépendantes, la seconde débute à partir du rayonnement cohérent résiduel de la première émission dont la loi statistique correspond à une distribution de Poisson ⁽⁷¹⁾ :

$$P_n = \frac{\langle n \rangle^n e^{-\langle n \rangle}}{n!} \quad (\text{III.79})$$

où $\langle n \rangle = \sum_n n P_n$ est le nombre moyen de photons.

L'influence d'une modification de la distribution statistique apparaît sur la figure III-18 qui représente une séquence à deux impulsions dans le cas où les deux émissions sont dépendantes. La première qui s'établit à partir du rayonnement thermique montre la superposition de signaux obtenus à chaque commutation de la puissance de pompe en revanche la seconde émission débute à partir du rayonnement cohérent et on observe alors la superposition de signaux identiques.

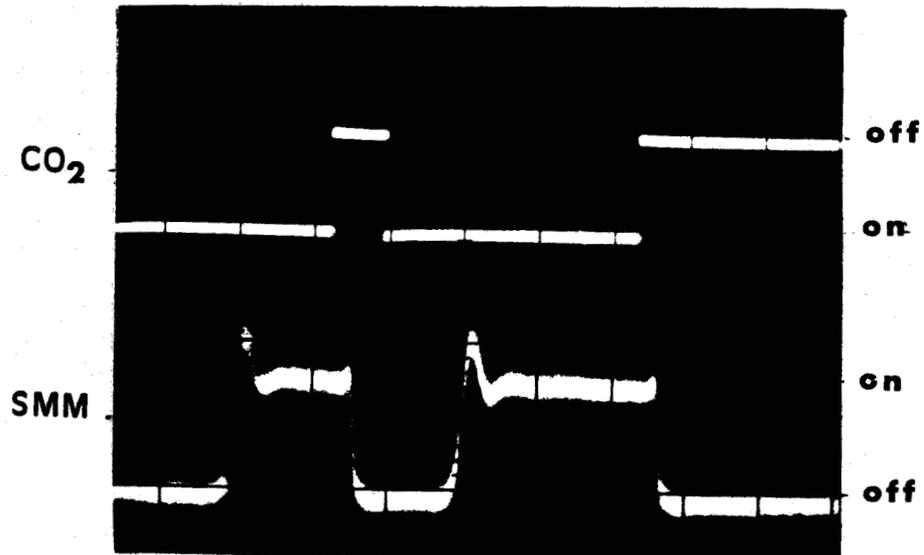


Figure III-18 : Photographie d'une séquence à deux impulsions. La seconde émission débute à partir du rayonnement cohérent résiduel de la première émission. La pression du milieu amplificateur est de 8 mTorr. L'échelle est de 10 μ s par division.

Cet effet apparaît indirectement (après moyennage) sur la figure III.19 qui a été obtenue pour des conditions expérimentales où l'émission laser présente un comportement oscillatoire. Dans ce cas, les fluctuations de l'émission sont observées comme une modification de l'amplitude des oscillations qui est notablement diminuée quand les fluctuations sont importantes (première émission) et fidèlement reproduite lorsque le moyennage est effectué à partir d'un ensemble de signaux identiques (seconde émission).

Ces premiers résultats expérimentaux nous ont permis de préciser qualitativement l'influence d'une modification de l'intensité initiale. D'autres expériences sont actuellement en cours afin de déterminer l'évolution de la loi de distribution des photons à l'intérieur de la cavité lorsque l'émission laser s'établit à partir du rayonnement thermique ou encore à partir du rayonnement cohérent de la première émission.

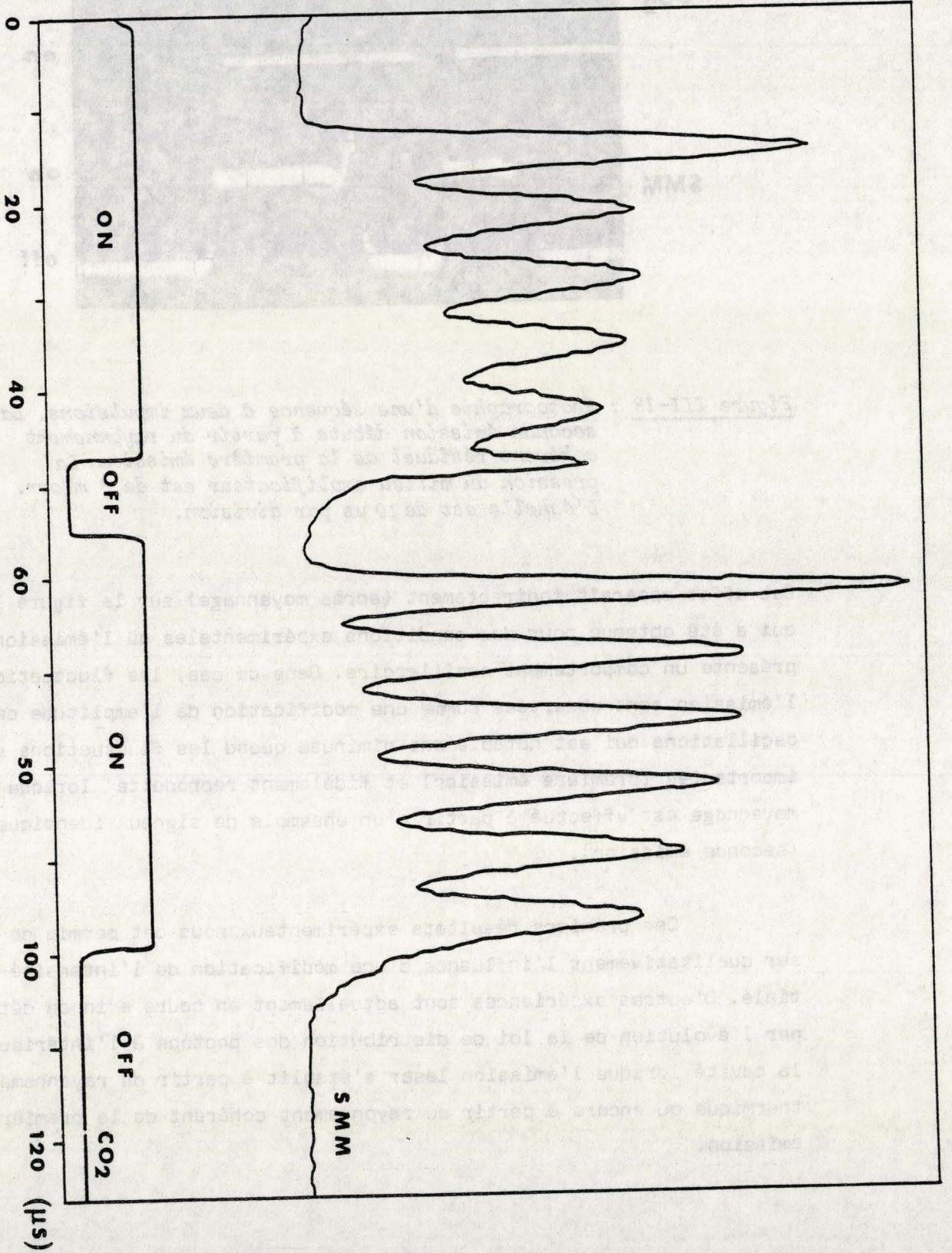


Figure III-19 : Signaux obtenus après moyennage d'une séquence à deux impulsions en régime oscillatoire.
Emission à 742 μm de H^{12}COOH , pression du milieu amplificateur : 4 mTorr, puissance de pompe : 0,8 W, écart à la résonance : 10 MHz.

III - 7) CONCLUSION

La commutation rapide de la puissance de pompe nous a permis d'observer différents comportements du laser SMM. Bien qu'une description complète du laser SMM optiquement pompé nécessite de prendre en compte trois niveaux d'énergie, nous avons montré que plusieurs effets sont bien décrits dans un modèle à deux niveaux.

Nous avons ainsi analysé les phénomènes transitoires observés à l'établissement de l'émission laser en considérant uniquement les deux niveaux couplés par le rayonnement SMM. Au cours de cette approche du problème général, nous avons pris en compte la structure de l'onde stationnaire qui est très souvent négligée a priori. Les équations différentielles établies dans ce modèle ont été présentées sous une forme particulièrement utile pour entreprendre une comparaison des dynamiques respectives du milieu amplificateur et du champ laser. Nous avons étudié plus particulièrement les effets transitoires observés en régime non linéaire qui n'avaient pas été interprétés au cours d'une première étude. En régime de faible saturation, nous avons montré que l'élimination adiabatique des variables moléculaires permettait d'obtenir immédiatement la loi de variation temporelle de l'émission laser établie dans la théorie de LAMB. L'intégration numérique des équations d'évolution montre que le modèle à deux niveaux d'énergie développé dans ce présent travail permet une bonne description des effets observés à l'établissement de l'émission laser. Ce modèle peut être utilisé pour décrire d'autres comportements du laser SMM, nous en avons donné une illustration qui peut être considérée comme le point de départ de nouvelles études en rapport avec l'analyse de stabilité des systèmes non linéaires.

En ce qui concerne le comportement oscillatoire, nous avons précisé les conditions expérimentales qui déterminent l'apparition d'un tel comportement et nous en avons proposé une interprétation à partir des résultats de la théorie de LAMB dans le cas où deux modes oscillent simultanément à l'intérieur de la cavité laser.

L'interprétation des phénomènes transitoires observés à l'interruption de la puissance de pompe nécessite de prendre en compte les trois niveaux d'énergie couplés par les rayonnements IR et SMM. Nous avons alors montré à partir du modèle de LAMB étendu à trois niveaux que la suroscillation observée à l'interruption de la puissance de pompe résulte d'un effet de cohérence à deux photons IR et SMM.

Enfin, nous avons présenté une première contribution à l'étude des propriétés statistiques de l'émission laser qui appelle des prolongements tant théoriques qu'expérimentaux.

CONCLUSION

Nous avons présenté et analysé au cours de ce travail deux types d'effets non linéaires se produisant dans un laser SMM optiquement pompé.

Dans les expériences de double résonance sur le milieu actif du laser, l'influence de l'accord de la cavité SMM sur la forme des signaux nous a conduit à considérer les effets d'indice. Ceux-ci ont été mis en évidence directement en mesurant la variation de la fréquence d'émission du laser induite par le rayonnement additionnel. Le fort couplage entre le milieu actif et le rayonnement additionnel réalisé dans notre dispositif expérimental rend celui-ci particulièrement bien adapté à l'excitation du laser SMM par pompage à deux photons (IR et MW) (72, 73). Le nombre de raies d'émission est en effet limité par le caractère accidentel de la coïncidence entre les raies d'émission du laser de pompe et les absorptions du gaz contenu dans le laser SMM. L'introduction dans la cavité du laser d'un rayonnement additionnel de puissance suffisante permet de remédier à cet inconvénient en réalisant un pompage à deux photons où la fréquence d'excitation est accordable par l'intermédiaire du rayonnement microonde. Une telle étude, un moment envisagée, a finalement été abandonnée après des essais infructueux sur plusieurs molécules. La réalisation de ces expériences nécessiterait en fait d'utiliser des sources hyperfréquences plus puissantes que celles disponibles au laboratoire ou encore de diminuer le diamètre du guide d'onde de la cavité métallique afin d'assurer un meilleur confinement du rayonnement MW.

En ce qui concerne le comportement transitoire du laser SMM, seul l'établissement de l'émission en régime de faible saturation avait été interprété au cours d'une étude antérieure. Notre travail a permis d'expliquer les différents effets observés quel que soit le régime de saturation. La montée en oscillation du laser SMM a été décrite à partir d'un modèle à deux niveaux d'énergie établi sur les bases de la théorie du laser de LAMB en champ fort. La suroscillation observée

à l'arrêt de la puissance de pompe ne peut être interprétée que dans un modèle à trois niveaux d'énergie. Nous avons montré que cet effet résultait d'un processus à deux photons IR et SMM. Ces modèles présentent l'avantage de préciser clairement l'origine des différents effets observés, cependant pour obtenir un accord quantitatif, il faudrait considérer les autres causes d'amortissement liées notamment à l'extension transversale finie du mode SMM ainsi qu'à l'inhomogénéité du champ IR à l'intérieur de la cavité.

Certains des résultats obtenus au cours de ce travail doivent être considérés comme préliminaires à de nouveaux développements qui sont actuellement en cours. Dès à présent, l'analyse de bifurcation de la transition stable \leftrightarrow instable mise en évidence lors de l'étude du comportement oscillatoire a permis d'établir les conditions de stabilité de la solution périodique qui apparaît au voisinage du point critique ; celui-ci est alors défini comme un point de bifurcation de HOPF⁽⁶⁴⁾. L'analyse des propriétés statistiques de l'émission laser a déjà montré que celles-ci sont essentiellement fixées par les processus intervenant dans les toutes premières phases de l'émission, lorsque la puissance émise est inférieure au minimum détectable dans notre domaine. Ce type d'expériences appelle aussi des prolongements théoriques puisque l'interprétation du comportement statistique ne peut être entreprise que dans une théorie quantique du laser.

ANNEXE : CRITERE DE ROUTH-HURWITZ

Considérons un polynôme $f(\lambda)$ de degré n à coefficients réels

$$f(\lambda) = C(0) \lambda^n + C(1) \lambda^{n-1} + \dots + C(n)$$

On associe à ce polynôme un ensemble de déterminants $D(m)$ pour $m = 1, \dots, n$ définis par :

$$D(m) = \begin{vmatrix} C(1) & C(0) & 0 & \dots & 0 \\ C(3) & C(2) & C(1) & & 0 \\ \cdot & & & & \\ \cdot & & & & \\ \cdot & & & & \\ C(2m-1) & C(2m-2) & C(2m-3) & & C(m) \end{vmatrix}$$

avec, par convention $C(m) = 0$ pour $m > n$.

Le critère de ROUTH-HURWITZ⁽⁶²⁾ s'énonce de la façon suivante :
Le nombre de racines d'un polynôme $f(\lambda)$ qui ont une partie réelle positive est égal au nombre de changements de signes dans la séquence S ordonnée suivante :

$$S = C(0), D(1), D(2)/D(1), \dots, D(m)/D(m-1)$$

Considérons à présent une position d'équilibre d'un système différentiel d'ordre n , cette position est stable si toutes les parties réelles des racines de l'équation caractéristique $f(\lambda)$ associée à ce système différentiel sont négatives. Les conditions de stabilité sont donc vérifiées si la séquence S définie ci-dessus ne présente pas de changement de signe.

Application au système différentiel III.53 :

Dans le cas particulier du système différentiel III.53, l'équation caractéristique (III.57) est du troisième degré, la séquence S est donc limitée aux termes suivants :

$$S = C(0), D(1), D(2)/D(1), D(3)/D(2)$$

$$\text{avec } D(1) = C(1)$$

$$D(2) = C(1).C(2)$$

$$D(3) = C(1).C(2).C(3) - C(0).C(3)^2$$

Dans l'équation III.57, $C(0)$ vaut 1 et la position d'équilibre (X_S^e, U^e, Y_2^e) est stable si tous les termes de la séquence S sont positifs. Ceci conduit aux inégalités suivantes :

$$C(1) > 0$$

$$C(2) > 0$$

$$C(3) > 0$$

$$C(1).C(2) - C(3) > 0$$

En remplaçant à présent les quantités $C(i)$ par les coefficients de l'équation III.57 et en considérant que par définition le paramètre ξ est positif, on obtient les conditions de stabilité de la position d'équilibre (X_S^e, U^e, Y_2^e) :

$$\eta > 1$$

$$(1+2\xi)(1+\eta\xi) - 2\xi(\eta-1) > 0$$

REFERENCES

- (1) B. MACKÉ
Appl.Phys., 13, 271 (1977).
- (2) E. ARIMONDO, T. OKA
Phys.Rev., A26, 1494 (1982).
- (3) R.L. SHOEMAKER
"Laser and Coherence Spectroscopy" p.197
J.I. Steinfeld, Plenum Press, New-York (1978).
- (4) P. GLORIEUX
Thèse d'Etat, Lille (1976).
- (5) Q.H.F. VREHEN, H.M. GIBBS
"Topics in Current Physics"
R. Bonifacio, Springer Verlag, New-York (1982).
- (6) J.R. TUCKER
Conf. Digest International Conf. on Submm Waves and their applica-
tions, Atlanta, MTT, 17 (1974).
- (7) D. DANGOISSE, P. GLORIEUX, J. WASCAT
Int.J.Infr. Millimeter Waves, 2, 215 (1981).
- (8) J. WASCAT
Thèse de 3ème Cycle, Lille (1982).
- (9) D. DANGOISSE, A. DELDALLE, J.P. SPLINGARD, J. BELLET
C.R. Acad.Sc. Paris, 283B, 115 (1976).
- (10) M. LEFEBVRE
Rapport de D.E.A., Lille (1980).
- (11) T.Y. CHANG
IEEE, Trans. on Micro. and Tech. MTT 22, 983 (1974).
- (12) D.T. HODGES
Infr.Phys., 18, 375 (1978).
- (13) M. YAMANAKA
J.Opt.Soc.Am., 67, 952 (1977).
- (14) J.A. STRATTON
"Théorie de l'Electromagnétisme" p.600
Dunod,(1961).
- (15) R.A. WOOD, N. BRIGNALL, C.R. PIDGEON, F. AL-BERKDAR
Infr.Phys., 16, 201 (1976).
- (16) D.T. HODGES, F.B. FOOTE, R.D. REEL
IEEE, J.Quant.Electron. QE13, 491 (1977).

- (17) E.A.J. MARCATILI, R.A. SCHMELTZER
Bell.Syst.Techn.J., 43, 1783 (1964).
- (18) J.J. DEGNAN, D.R. HALL
IEEE, J.Quant.Electron., QE9, 901 (1973).
- (19) J.J. DEGNAN
Appl.Phys., 11, 1 (1976).
- (20) M. LYSZYK
Thèse de 3ème Cycle, Lille (1978).
- (21) J. DEPRET
Thèse de 3ème Cycle, Lille (1979).
- (22) D. DANGOISSE, P. GLORIEUX
J. Mol.Spectrosc., 92, 283 (1982).
- (23) D.T. HODGES, T.S. HARTWICK
Appl.Phys.Lett., 23, 252 (1973).
- (24) D. DANGOISSE
Thèse d'Etat, Lille (1980).
- (25) R. ULRICH
Infr.Phys., 7, 37 (1967).
- (26) D.A. WEITZ, W.J. SKOCPOL, M. TINKHAM
Opt.Lett., 3, 13 (1978).
- (27) M.R. SCHUBERT, M.S. DURSCHLAG, T.A. DE TEMPLE
IEEE, J.Quant.Electron., QE13, 455 (1977).
- (28) E.J. DANIELEWICZ, T.K. PLANT, T.A. DE TEMPLE
Opt.Comm., 13, 366 (1975).
- (29) D. DANGOISSE, A. DELDALLE, P. GLORIEUX
J.Chem.Phys., 69, 5201 (1978).
- (30) D. DANGOISSE, P. GLORIEUX
Opt.Comm., 32, 246 (1980).
- (31) A.F. HARVEY
"Microwave Engineering" p.16
Academic Press, London, New-York (1963).
- (32) D. DANGOISSE, E. WILLEMOT, A. DELDALLE, J. BELLET
Opt.Comm., 28, 111 (1979).
- (33) E. WILLEMOT, D. DANGOISSE, J. BELLET
J.Mol.Spectrosc., 77, 161 (1979).
- (34) W.W. RIGROD
J.Appl.Phys., 34, 2602 (1963).
- (35) B. MACKE
Thèse d'Etat, Lille (1970).

- (36) M.R. SIEGRIST, D.D. MORGAN, M.R. GREEN
J.Appl.Phys., 49, 3699 (1978).
- (37) R.L. PANOCK, R.J. TEMKIN
IEEE, J.Quant.Electron. QE13, 425 (1977).
- (38) B.G. DANLY, R.J. TEMKIN
IEEE, J.Quant.Electron. QE16, 587 (1980).
- (39) F. ROHART
Thèse d'Etat, Lille (1981).
- (40) W.E. LAMB, Jr
Phys.Rev., 134, 1429 (1964).
- (41) M. SARGENT, M.O. SCULLY, W.E. LAMB, Jr
"Laser Physics"
Addison-Wesley (1974).
- (42) W.R. KLEIN, B.D. COOK
IEEE, Trans. Sonics and Ultrasonics, SU14, 123 (1967).
- (43) R.L. ABRAMS, D.A. PINNOW
J.Appl.Phys., 41, 2765 (1970).
- (44) H. DEVE
Thèse de 3ème Cycle, Lille (en cours)
- (45) J. WASCAT, D. DANGOISSE, P. GLORIEUX, M. LEFEBVRE
IEEE, J.Quant.Electron., QE 19, 92 (1983).
- (46) S. STENHOLM, W.E. LAMB, Jr
Phys.Rev., 181, 618 (1969).
- (47) F. ROHART, B. MACKE
J.Physique, 41, 837 (1980).
- (48) A.G. FOX, T. LI
B.S.T.J., 40, 61 (1961).
- (49) A.Z. GRASYUK, A.N. ORAYEVSKIY
Radio Eng.Electron.Phys., p.424
Trad.Anglaise de Radiotekhn i Elektron., 9524 (1964).
- (50) S. STENHOLM
Phys.Rev.B., 1, 15 (1970).
- (51) B. MACKE
Opt.Comm., 28, 131 (1979).
- (52) B.J. FELDMAN, M.S. FELD
Phys.Rev. A., 1, 1375 (1970).
- (53) J.L. LE GOUET, P.R. BERMAN
Phys.Rev.A, 20, 1105 (1979).

- (54) G. HERZBERG
"Infrared and Raman Spectra of Polyatomic Molecules", p.506
D. Van Nostrand Company (Canada) (1968).
- (55) C. KIKUCHI, J. LAMBE, G. MAKHOV, R.W. TERHUNE
J.Appl.Phys., 30, 1061 (1959).
- (56) S. FONER, L.R. MOMO, A. MAYER
Phys.Rev.Lett., 3, 36 (1951).
- (57) H. STATZ, G. DE MARS
Quantum Electronics, p.530
Columbia University Press, New-York (1960).
- (58) C.L. TANG
J.Appl.Phys., 34, 2935 (1963).
- (59) G. MAKHOV
J.Appl.Phys., 33, 202 (1962).
- (60) D.M. SINNETT
J.Appl.Phys., 33, 1578 (1962).
- (61) V. ARNOLD
"Equations différentielles ordinaires", p.155
Trad. française, éditions MIR (1974).
- (62) L.A. LUGIATO, P. MANDEL, S.T. DEMBINSKI, A. KOSSAKOWSKI
Phys.Rev.A, 18, 238 (1978).
- (63) T. ERNEUX, P. MANDEL
Z.Phys.B, 44, 353 (1981).
- (64) P. MANDEL, T. ERNEUX
Opt.Acta, 29, 7 (1982).
- (65) J. HEPPNER, C.O. WEISS
Opt.Comm., 21, 324 (1977).
- (66) N. SKRIBANOWITZ, I.P. HERMAN, R.M. OSGOOD Jr, M.S. FELD, A. JAVAN
Appl.Phys.Lett., 20, 428 (1972).
- (67) T.A. DE TEMPLE, E.J. DANIELEWICZ
IEEE, J.Quant.Electron., QE12, 40 (1976).
- (68) A.A. MANENKOV, R.M. MARTIROSYAN, Yu.P. PIMENOV, A.M. PROKHOROV,
V.A. SYCHUGOV
Sov.Phys. JETP, 20, 1385 (1965).
- (69) P. GLORIEUX, B. MACKE
Chem.Phys.Lett., 4, 126 (1974).
- (70) F.T. ARECCHI, V. DEGIORGIO
Phys.Rev.A, 3, 1108 (1971).
- (71) M.O. SCULLY, W.E. LAMB, Jr
Phys.Rev., 159, 208 (1967).

(72) G.D. WILLENBERG, C.O. WEISS, H. JONES
Appl.Phys.Lett., 37, 133 (1980).

(73) G.D. WILLENBERG
Opt.Lett., 6, 372 (1981).

