Influence des phénomènes de relaxation sur la forme des impulsions fournies par un laser CO₂ déclenché par un absorbant saturable

J. Dupré, F. Meyer, C. Meyer

► To cite this version:

J. Dupré, F. Meyer, C. Meyer. Influence des phénomènes de relaxation sur la forme des impulsions fournies par un laser CO₂ déclenché par un absorbant saturable. *Revue de Physique Appliquée*, 1975, 10 (5), pp.285-293. 10.1051/rphysap:01975001005028500 . jpa-00243914

HAL Id: jpa-00243914

<https://hal.science/jpa-00243914>

Submitted on 1 Jan 1975

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification
 Physics Abstracts
 2.600 — 2.632

INFLUENCE DES PHÉNOMÈNES DE RELAXATION SUR LA FORME DES IMPULSIONS FOURNIES PAR UN LASER CO₂ DÉCLENCHÉ PAR UN ABSORBANT SATURABLE

J. DUPRÉ, F. MEYER et C. MEYER

Laboratoire d'Infrarouge (*), Université de Paris VI, Bâtiment 350, 91405 Orsay, France

(Reçu le 25 novembre 1974, révisé le 3 mars 1975, accepté le 22 avril 1975)

Résumé. — La forme des impulsions laser, fournies par un laser à gaz carbonique déclenché par un absorbant saturable, SF₆, a été étudiée expérimentalement ; un modèle théorique du phénomène a été élaboré. Il permet de reconstituer un train d'impulsions laser. Dans les tests effectués sur cette méthode de calcul, l'accent a été mis particulièrement sur le rôle de la relaxation rotationnelle dans l'absorbant.

Abstract. — The shape of the pulses generated by a passive Q-switched CO₂ laser with SF₆ as a saturable absorber, was studied. A theoretical scheme of this phenomenon was developed. Trains of laser pulses may be calculated with this model. Tests of the calculations show the dominant role of rotational relaxation in the absorber.

Introduction. — Le déclenchement passif du laser à gaz carbonique a été souvent observé, en utilisant principalement SF₆ ou BCl₃ comme absorbant saturable [1, 2]. Depuis l'apparition des lasers TEA à gaz carbonique, ces études ont en partie été abandonnées. Nous avons repris des recherches sur ce phénomène, et nous présentons ici le résultat de nos observations expérimentales. D'autre part, nous proposons un modèle théorique qui permet de donner une interprétation satisfaisante du processus de création des impulsions laser.

1. **Montage expérimental.** — La figure 1 présente le schéma de l'expérience. La cavité a 1 m de longueur. Pour diminuer l'influence des dilatations, son support est constitué par deux tiges de quartz de forte section. A

une extrémité, un réseau en acier inoxydable de 150 traits par mm et de 45° d'angle de miroitement sert de réflecteur et de sélecteur de fréquence. A l'autre extrémité, un miroir diélectrique transmet 5 % de l'énergie à 10,6 μ.

L'énergie laser sort par ce miroir et est envoyée sur un spectromètre qui sert à identifier les raies laser. Le détecteur de ce spectromètre est une diode TeHg-TeCd dont le temps de réponse est voisin de 3 ns⁽¹⁾. Le signal électrique fourni par le détecteur est envoyé sur un oscilloscope HP183A dont le temps de réponse est inférieur à 3 ns. De l'énergie laser est également réfléchi par l'ordre zéro du réseau. Elle est reçue sur une thermopile.

Le tube amplificateur a 70 cm de longueur et son diamètre interne est de 1 cm. Le mélange CO₂-N₂-He est pompé en permanence à travers le tube. Les pressions partielles des gaz sont 0,5 torr de CO₂, 0,5 torr de N₂ et 1 torr de He. Le courant de décharge est de 30 mA sous 12 kV.

L'absorbant saturable est contenu dans une cuve de 10 cm de longueur. Des fenêtres en chlorure de sodium sont placées à l'incidence brewstérienne. Cette cuve est connectée à une pompe secondaire et à une installation qui permet d'admettre et de mélanger plusieurs gaz.

FIG. 1. — Montage expérimental.

(*) Laboratoire associé au C. N. R. S.

⁽¹⁾ Ce détecteur nous a été fourni par la Société Anonyme des Télécommunications.

La pression totale dans la cuve est contrôlée à l'aide d'une jauge de MacLeod sensible de 10^{-6} torr à 10^{-1} torr.

2. Observations expérimentales. — Dans les conditions normales de fonctionnement du tube amplificateur, le régime impulsionnel apparaît pour des pressions de SF_6 comprises entre 50μ et 120μ de Hg (Photo 1a). Comme le montre la photo 1b, une impul-

PHOTO 1a. — Train d'impulsions ($50 \mu\text{s}/\text{division}$).

PHOTO 1b. — Une impulsion ($10 \mu\text{s}/\text{division}$).

sion comporte un front de montée très raide. Le sommet de l'impulsion est atteint en moins de 80 ns. La chute de l'impulsion est un peu plus lente, ce qui conduit à une largeur à mi-hauteur comprise entre 250 et 300 ns. L'impulsion est suivie d'une traîne qui est une émission presque constante dont la durée varie avec la pression de SF_6 . La fin de la traîne est en général marquée par une très faible impulsion. L'intervalle de temps entre deux grandes impulsions dépend de la longueur de la traîne mais n'excède jamais 600 μs . La forme très particulière de ces impulsions a déjà été signalée, en particulier par Burak *et al.* [3], mais n'a jamais fait l'objet d'aucune étude. Il faut signaler que nous avons observé une forme très semblable avec d'autres absorbants saturables, BCl_3 par exemple. Nous avons entrepris de définir expérimentalement les caractères de ce phénomène.

Si on étudie une impulsion en faisant un balayage

très rapide de l'oscillographe (Photo 2), on remarque que depuis le sommet, l'énergie laser décroît d'abord très vite, puis vers la mi-hauteur la décroissance devient plus lente. On a pu déterminer que pendant la durée de la traîne, la décroissance est exponentielle.

PHOTO 2. — Impulsion observée avec un balayage plus rapide ($0,2 \mu\text{s}/\text{division}$).

Ceci implique que l'inversion de population n'ait pas été complètement détruite par le passage de l'impulsion principale, et que l'absorbant reste transparent pendant un temps suffisant. La décroissance étant très lente, les pertes (pertes fixes de la cavité plus résidu d'absorption) sont à peine supérieures au gain résiduel du tube amplificateur. Dès que l'absorbant par relaxation tend à revenir vers son état d'équilibre, les pertes l'emportent nettement et provoquent l'extinction définitive de l'émission. Il faut rappeler que l'extinction n'est pas un phénomène simple puisqu'elle est précédée par une petite remontée de l'émission laser. On peut également signaler que la traîne disparaît si l'on ajoute un gaz étranger comme de l'hélium à SF_6 . Ceci conduit à penser que les relaxations sont des phénomènes très importants qui peuvent modifier énormément la forme de l'impulsion laser. Ces conclusions seront vérifiées dans la quatrième partie.

Nous avons ensuite mesuré la durée de la traîne θ en faisant varier la pression p de SF_6 . La forme de la courbe $\theta = f(p)$ nous a conduit à tester une loi expérimentale telle que :

$$\text{Log } \theta = k(1/p).$$

La figure 2 montre que cette loi est parfaitement vérifiée pour les raies P_{20} et P_{24} de la transition $\nu_3-\nu_1$. Le mécanisme du déclenchement passif se révélant très complexe dans son évolution, il n'apparaît pas possible de retrouver par la théorie la forme explicite de $\text{Log } \theta$, mais nous verrons que, par le calcul, on peut néanmoins vérifier la validité de la loi expérimentale que nous avons choisie.

Le temps entre deux impulsions est un des caractères auquel nous nous sommes intéressés. La période T des impulsions dépend de la pression de l'absorbant. On observe que le temps $t = T - \theta$ qui sépare la fin de la traîne de l'impulsion suivante, varie faiblement avec

FIG. 2. — Variation de la durée de la traîne θ (μ s) en fonction de la pression p de l'absorbant saturable.

cette pression. Sur la photo 1a, on peut estimer cette durée à 150 μ s avec une incertitude relative de 10 %. Cette durée est liée au temps que met le milieu amplificateur pour revenir à une inversion de population suffisante pour redéclencher l'émission laser. Ce temps est à rapprocher de la valeur $t = 300$ μ s publiée par Javan *et al.* [4] dans une expérience assez différente et avec un tube amplificateur moins performant. Il faut noter que t et θ sont très sensibles au coefficient de surtension de la cavité. Des vibrations peuvent affecter ces valeurs. Toutes nos mesures ont donc été faites en isolant au mieux la cavité des vibrations extérieures.

3. Calcul théorique de la forme des impulsions laser.

— 3.1 ÉTABLISSEMENT DES ÉQUATIONS D'ÉVOLUTION. —

La reconstitution des impulsions émises par un laser contenant un absorbant saturable a été entreprise pour la première fois par Szabo et Stein [5] et Hofelich-Abate *et al.* [6], pour expliquer la génération d'onde géante par un laser à rubis contenant un absorbant saturable. Le mécanisme était décrit par trois équations différentielles qui fournissent l'évolution de la densité de photons dans la cavité, l'évolution de l'inversion de population dans le milieu amplificateur, et l'évolution des populations dans l'absorbant.

Ce schéma se révèle trop simpliste pour être appliqué directement à un milieu moléculaire. Une excellente approche de la résolution a été donnée par Burak *et al.* [3]. Son calcul repose sur un modèle raisonnable qui décrit tous les échanges d'énergie à l'intérieur des deux milieux moléculaires. Rappelons ici le modèle proposé schématisé sur la figure 3. Aussi bien pour le milieu amplificateur que pour le milieu absorbant, on considère les deux niveaux rovibrationnels J_1 et J_2 qui sont liés par le phénomène radiatif. Nous appellerons :

N_{J_1} et N_{J_2} les populations des niveaux J'_1, J'_2 de l'absorbant et M_{J_1} et M_{J_2} les populations des niveaux J_1, J_2 de l'amplificateur.

Toutes les variables relatives à l'absorbant seront indicées N , celles relatives à l'amplificateur, M .

Les niveaux rotationnels J_1, J_2, J'_1 et J'_2 sont entourés par d'autres niveaux rotationnels du même niveau vibrationnel v avec lesquels il peut y avoir échange de molécules par relaxation rotationnelle. La base du calcul consiste à admettre que ces niveaux rovibrationnels autres que J_1, J_2, J'_1 et J'_2 forment un ensemble

FIG. 3. — Représentation schématique d'un modèle à 4 niveaux. a) Dans l'amplificateur. b) Dans l'absorbant saturable.

non dissociable. Nous appellerons N_1, N_2, M_1, M_2 la population totale de ces niveaux rovibrationnels respectivement dans l'absorbant et dans l'amplificateur. La relaxation entre les niveaux $J'_{1 \text{ ou } 2}$ et $N_{1 \text{ ou } 2}$ dans l'absorbant ($J_{1 \text{ ou } 2}$ et $M_{1 \text{ ou } 2}$ dans l'amplificateur) sera décrite par une constante de relaxation que nous nommerons R_N (R_M) : Burak *et al.* ont montré que cette constante doit être choisie un peu inférieure à la constante de relaxation rotationnelle k_{i-j} .

A partir de ce modèle, on voit que N_{J_1} et N_{J_2} vont évoluer sous l'action de plusieurs phénomènes :

— Le phénomène radiatif correspondant à la transition $J'_2 \rightarrow J'_1$ est amplifié ou réabsorbé par les deux milieux moléculaires. C'est le phénomène dominant dans la création des impulsions laser.

— La relaxation rotationnelle $N \rightleftharpoons N_J$ et $M \rightleftharpoons M_J$, qui tend à créer dans les états vibrationnels un pseudo-équilibre dans leurs populations rotationnelles.

— Le pompage qui tend à ramener la population M_2 , vers son état de pseudo-équilibre décrit par une température vibrationnelle très élevée.

— La relaxation vibrationnelle qui tend à ramener M_1, N_1, N_2 vers leur état d'équilibre.

Nous avons établi les équations qui déterminent l'évolution de la densité de photons et des populations. Elles forment un système de neuf équations différentielles couplées (Tableau I) que nous analysons ci-dessous.

TABLEAU I

$$\begin{aligned} \frac{d\varphi}{dt} &= \left\{ (1 - \Gamma) \exp \left[A_M l \left(\frac{M_{J_2}}{g_2} - \frac{M_{J_1}}{g_1} \right) - A_N d \left(\frac{N_{J'_1}}{g'_1} - \frac{N_{J'_2}}{g'_2} \right) \right] - 1 \right\} \frac{c}{L} \varphi + S_M M_{J_2} + S_N N_{J'_2} \quad [\text{I.A}] \\ \frac{dM_{J_1}}{dt} &= A_M \left(\frac{M_{J_2}}{g_2} - \frac{M_{J_1}}{g_1} \right) c\varphi - R_M M_{J_1} + R'_{M_1} \cdot M_1, \quad [\text{I.B}] \\ \frac{dM_{J_2}}{dt} &= -A_M \left(\frac{M_{J_2}}{g_2} - \frac{M_{J_1}}{g_1} \right) c\varphi - R_M M_{J_1} + R'_{M_2} \cdot M_2, \quad [\text{I.C}] \\ \frac{dM_1}{dt} &= R_M M_{J_1} - R'_{M_1} \cdot M_1 - V_1(M_1 - M_1^*) \quad [\text{I.D}] \\ \frac{dM_2}{dt} &= R_M M_{J_2} - R'_{M_2} \cdot M_2 - P_2(M_2 - M_2^*) \quad [\text{I.E}] \\ \frac{dN_{J'_1}}{dt} &= -A_N \left(\frac{N_{J'_1}}{g'_1} - \frac{N_{J'_2}}{g'_2} \right) c\varphi - R_N \cdot N_{J'_1} + R'_{N_1} \cdot N_1 \quad [\text{I.F}] \\ \frac{dN_{J'_2}}{dt} &= A_N \left(\frac{N_{J'_1}}{g'_1} - \frac{N_{J'_2}}{g'_2} \right) c\varphi - R_N N_{J'_2} + R'_{N_2} \cdot N_2 \quad [\text{I.G}] \\ \frac{dN_1}{dt} &= R_N N_{J'_1} - R'_{N_1} \cdot N_1 - T_1(N_1 - N_1^0) + R_{\text{vib}} \cdot N_2 \quad [\text{I.H}] \\ \frac{dN_2}{dt} &= R_N N_{J'_2} - R'_{N_2} \cdot N_2 - T_2(N_2 - N_2^0) - R_{\text{vib}} \cdot N_2. \quad [\text{I.J}] \end{aligned}$$

a) Nombre de photons par unité de volume d'un mode à l'intérieur de la cavité :

Les conditions particulières de fonctionnement d'un laser à gaz carbonique (gain et pertes par couplage très élevés) nous imposent d'écrire très rigoureusement cette équation.

L'onde dont la densité de photons est φ se propage dans la cavité de longueur L . Elle subit une absorption dans la cuve de longueur d et sa densité devient $\varphi e^{-\alpha_N d}$. Elle est ensuite amplifiée dans le tube luminescent de longueur l et sa densité atteint $\varphi e^{\alpha_M l - \alpha_N d}$, α_M et α_N sont positifs. Sur le miroir l'onde subit des pertes de pourcentage Γ . La fraction réfléchie est donc $\varphi(1 - \Gamma) e^{\alpha_M l - \alpha_N d}$. Pendant le temps $dt = L/c$, que l'onde met à traverser la cavité, elle subit une variation de sa densité de photons qui peut s'exprimer par :

$$\frac{d\varphi}{dt} = [(1 - \Gamma) e^{\alpha_M l - \alpha_N d} - 1] \frac{c}{L} \varphi.$$

Nous pouvons expliciter α_M ou α_N au sommet de raies élargies par effet Doppler. Des corrections seraient nécessaires, en particulier dans l'amplificateur, pour tenir compte de l'élargissement mixte qui se traduit par la forme de Voigt. Nous pouvons écrire pour l'amplificateur :

$$\alpha_M = \sqrt{\frac{\text{Log } 2}{\Pi}} \frac{1}{\gamma_D} B_{21} g_1 \left[\frac{M_{J_2}}{g_2} - \frac{M_{J_1}}{g_1} \right] \frac{h\nu}{c} \quad (1)$$

où B_{21} est le coefficient d'Einstein d'émission induite correspondant à la transition $2 \rightarrow 1$, $g_1 = 2J_1 + 1$, $g_2 = 2J_2 + 1$, soit sous une forme plus développée :

$$\alpha_M = \sqrt{\frac{\text{Log } 2}{\Pi}} \frac{1}{\gamma_D} \frac{8 \Pi^3 \sigma}{3 hc} |m| |R'_v(m)|^2 \times \left(\frac{M_{J_2}}{g_2} - \frac{M_{J_1}}{g_1} \right) \quad (2)$$

où γ_D est la demi-largeur Doppler de la raie, σ son nombre d'onde, ν fréquence, $|m|$ est la probabilité de transition rotationnelle et vaut J pour une raie P et $(J + 1)$ pour une raie R, $|R'_v(m)|^2$ est la probabilité de transition vibrationnelle. Pour simplifier l'écriture nous poserons :

$$A_M = \sqrt{\frac{\text{Log } 2}{\Pi}} \frac{1}{\gamma_D} \frac{8 \Pi^3 \sigma}{3 hc} |m| |R'_v(m)|^2.$$

Dans l'éq. (1) nous devons ajouter deux termes d'émission spontanée S_N et S_M provenant de la cuve et du tube amplificateur. Leur contribution est excessivement faible. Cette émission joue un rôle néanmoins capital, puisqu'elle crée dans la cavité les quelques photons nécessaires à faire démarrer l'émission laser. L'équation complète est présentée dans le tableau I. Il faut remarquer qu'elle prend la forme adoptée par d'autres auteurs [3, 5, 6], quand l'absorption, l'amplification et les pertes sont supposées négligeables. Soit :

$$\begin{aligned} \frac{d\varphi}{dt} &= \left\{ A_M l \left(\frac{M_{J_2}}{g_2} - \frac{M_{J_1}}{g_1} \right) - \right. \\ &\quad \left. - A_N d \left(\frac{N_{J'_1}}{g'_1} - \frac{N_{J'_2}}{g'_2} \right) - \Gamma \right\} \frac{c}{L} \varphi + S_M M_{J_2} + S_N N_{J'_2} \quad (3) \end{aligned}$$

b) *Etablissement des équations d'évolution dans l'amplificateur.* — Suivant le schéma adopté, nous devons introduire quatre équations qui régissent respectivement l'évolution des populations M_{J_1} , M_{J_2} , M_1 , M_2 .

Pour M_{J_1} et M_{J_2} , il faut retenir d'abord le rôle de l'absorption et de l'émission induite sous l'effet de la densité de photons ρ soit :

$$\frac{dM_{J_1}}{dt} = -B_{12} \left| M_{J_1} - \frac{g_1}{g_2} M_{J_2} \right| \rho$$

avec $\rho = hc\sigma\varphi$

soit :

$$\frac{dM_{J_1}}{dt} = A_M \left| \frac{M_{J_2}}{g_2} - \frac{M_{J_1}}{g_1} \right| c\varphi$$

et :

$$\frac{dM_{J_2}}{dt} = -A_M \left| \frac{M_{J_2}}{g_2} - \frac{M_{J_1}}{g_1} \right| c\varphi.$$

Nous devons ensuite tenir compte de la relaxation rotationnelle qui tend à rééquilibrer le niveau rovibrationnel J_1 ou J_2 avec les autres niveaux rotationnels du même niveau vibrationnel. Nous écrirons :

$$\frac{dM_{J_1}}{dt} = -R_M^1 (M_{J_1} - M_{J_1}^{\text{eqR}})$$

$$\frac{dM_{J_2}}{dt} = -R_M^2 (M_{J_2} - M_{J_2}^{\text{eqR}}).$$

$M_{J_1}^{\text{eqR}}$ et $M_{J_2}^{\text{eqR}}$, populations de J_1 et J_2 quand l'équilibre rotationnel est atteint, peuvent être exprimés en fonction de M_1 et M_2

$$M_{J_1}^{\text{eqR}} = \beta_1 M_1^{\text{total}} = \beta_1 (M_1^{\text{eq}} + M_{J_1}^{\text{eq}}) = \frac{\beta_1}{1 - \beta_1} M_1$$

$$M_{J_2}^{\text{eqR}} = \beta_2 M_2^{\text{total}} = \beta_2 (M_2^{\text{eq}} + M_{J_2}^{\text{eq}}) = \frac{\beta_2}{1 - \beta_2} M_2.$$

Nous admettrons que les taux de relaxation rotationnels R_M^1 et R_M^2 , pour les niveaux inférieur et supérieur, sont égaux : $R_M^1 = R_M^2 = R_M$. Nous poserons en outre :

$$R'_M = \frac{\beta}{1 - \beta} R_M.$$

Il vient finalement :

$$\frac{dM_{J_1}}{dt} = -R_M M_{J_1} + R'_M M_1 \quad (4)$$

$$\frac{dM_{J_2}}{dt} = -R_M M_{J_2} + R'_M M_2. \quad (5)$$

On peut également tenir compte du terme d'émission spontanée : $+S_M M_{J_2}$ dans [4] et $-S_M M_{J_2}$ dans [5].

Ce terme a peu d'influence et dans la pratique il peut être négligé.

Le tableau I fournit l'expression complète de ces deux équations.

Pour M_1 et M_2 , on doit également retenir le rôle de la relaxation rotationnelle, soit :

$$\frac{dM_1}{dt} = R_M M_{J_1} - R'_M M_1 \quad (6)$$

$$\frac{dM_2}{dt} = R_M M_{J_2} - R'_M M_2 \quad (7)$$

en utilisant les notations précédentes.

Pour l'état 2, qui est le niveau vibrationnel v_3 , un terme que nous appelons terme de pompage P_2 tend à amener la population M_2 vers son état de pseudo-équilibre M_2^* , définies par une température vibrationnelle T_v [12]

$$\frac{dM_2}{dt} = -P_2 (M_2 - M_2^*).$$

De même pour l'état 1, quand il se trouve surpeuplé, on doit introduire un terme de relaxation qui le ramène à sa valeur stationnaire, M_1^* [12] soit :

$$\frac{dM_1}{dt} = -V_1 (M_1 - M_1^*).$$

Nous disposons de deux équations supplémentaires qui figurent dans le tableau I.

c) *Etablissement des équations d'évolution des populations dans l'absorbant.* — Les équations sont du même type que dans l'amplificateur. Il n'y a pas dans l'absorbant de terme de pompage, par contre, il est légitime d'introduire un terme que nous désignons par T_1 ou T_2 et qui décrit le rééquilibrage thermodynamique. Dans l'écriture, N_1^0 et N_2^0 , sont les populations des niveaux 1 et 2 à la température T et à l'équilibre. D'autre part étant donnée la forte probabilité de transition, un terme de relaxation par fluorescence doit être pris en compte. Il est décrit par un coefficient noté R_{vib} . Les quatre équations relatives à l'absorbant sont fournies par le tableau I. En définitive, nous disposons de neuf équations différentielles à neuf inconnues. La résolution de ce système va nous conduire à rendre compte de façon satisfaisante du phénomène de déclenchement passif.

3.2 RÉSOLUTION DU SYSTÈME. — La résolution du système a été rendue possible par l'utilisation de l'ordinateur UNIVAC 1110 de l'Université de Paris XI. L'adaptation du programme de résolution par la méthode de Runge-Kutta à notre problème nous permet de retracer la forme des impulsions pour des intervalles de temps de 3 ns, correspondant à chaque passage de l'onde dans la cavité. La première application que nous avons faite a été adaptée à SF₆.

Les paramètres figurant dans les équations ont été fixés aux valeurs les plus fiables publiées dans la littérature. Dans l'amplificateur, nous avons retenu les valeurs suivantes :

— Pour le terme A_M , nous avons choisi les résultats publiés en référence [7]. Pour la raie P_{20} de la transition $\nu_3-\nu_1$ nous avons retenu la valeur :

$$A_M = 6,2 \times 10^{-15} \text{ cm}^{-1} \text{ molécule}^{-1}.$$

— Le coefficient de pertes Γ a été estimé dans notre montage à $\Gamma = 0,20$.

— Le coefficient β est défini par la loi de Boltzman à la température de rotation T_R . Il a été calculé en utilisant les tables de Gray [8], ainsi que les constantes rotationnelles connues de CO_2 .

— Le terme R_M de relaxation rotationnelle, est un paramètre qui a fait l'objet de nombreuses mesures. Dans les conditions de pression des gaz utilisés dans le tube luminescent, nous avons le choix entre les valeurs de : 10^7 s^{-1} déterminée par Chéo et Abrams [9], $1,5 \times 10^7$ publiée par Lécuyer [10], et $1,8 \times 10^7$ selon Jacobs [11]. Cette dernière valeur nous a donné entière satisfaction comme on le verra plus loin.

— Les valeurs de V_1 et P_2 jouent un rôle très important dans le phénomène et nous discuterons leur choix dans le dernier paragraphe.

— Les valeurs stationnaires des populations dans le plasma, M_1^* et M_2^* ont été fixées à celles déterminées par D. Bailly [12].

Dans l'absorbant, les paramètres sont beaucoup moins bien déterminés.

— Par mesure directe de l'absorption de la raie P_{20} du laser, nous avons déterminé le coefficient d'absorption α_{exp} . En se reportant aux équations du tableau I nous pouvons définir :

$$A_N = \frac{\alpha_{\text{exp}}}{\frac{N_{J'_1}}{g'_1} - \frac{N_{J'_2}}{g'_2}}.$$

Il ne peut être calculé si l'on ne connaît pas les niveaux d'énergie de SF_6 . En effet :

$$\frac{N_{J'_1}}{g'_1} = N \frac{e^{-hc\sigma_1/kT}}{Z_v Z_R} e^{-hcB_1} \frac{J(J+1)}{kT} = \frac{\beta_1 N}{Z_v} e^{-hc\sigma_1/kT}.$$

Des mesures conduisent à une valeur

$$\beta_1 = \beta_2 \approx 1/300 \text{ [13], [14].}$$

Il nous faut encore connaître la fonction de partition vibrationnelle Z_v et σ_1 . La figure 4 présente les valeurs connues des niveaux d'énergie vibrationnels S_6 . Nous en déduisons :

$$Z_v = 3,0.$$

Certains auteurs ont été amenés à penser que la transition active pourrait être $\nu_3 + \nu_6 - \nu_6$. Nous n'avons pas retenu cette hypothèse et nous avons admis que le niveau de départ de la transition qui absorbe est le niveau fondamental de la molécule. Il en découle une valeur de $A_N = 7,9 \times 10^{-13} \text{ cm}^{-1}/\text{mol}$. Le terme de relaxation vibrationnelle a été choisi à la valeur [13] :

$$R^{\text{vib}} = 2,5 \times 10^4 \text{ s}^{-1}.$$

FIG. 4. — Représentation de quelques niveaux d'énergie vibrationnels de la molécule de SF_6 .

La valeur de R_N a été déterminée par des mesures de relaxation rotationnelle de SF_6 par He [15]. La valeur de $R_N = 10^7 \text{ s}^{-1}$ nous a permis de rendre compte de la forme exacte des impulsions.

Avec cet échantillonnage de valeurs, nous avons pu recalculer les impulsions présentées sur la figure 5. Elle représente comme nous l'espérons des impulsions de 300 ns de largeur chaque impulsion étant suivie d'une traîne de très longue durée. Ce profil peut être comparé avec l'une des photos précédentes. Nous allons présenter les tests effectués sur notre calcul et discuter les hypothèses que nous avons faites.

FIG. 5. — Reconstitution par ordinateur d'un train d'impulsions.

4. Résultats des calculs. — Etant donnée la longueur des temps de calcul, il n'est pas possible de tester tous les paramètres qui apparaissent dans nos équations. En particulier, nous avons admis comme connues les valeurs de A_M dans l'amplificateur. Pour l'absorbant, nous supposons également connus A_N et β_N . Nous nous sommes attachés à l'étude du terme de pompage P_2 , du terme de relaxation vibrationnelle V_1 et de relaxation rotationnelle R_M dans le plasma. Dans l'absorbant, nous avons testé le rôle du terme de relaxation rotationnelle R_N et de la pression.

4.1 RÔLES DE V_1 ET P_2 . — P_2 est lié à l'inverse du temps d'excitation du niveau v_3 . Les collisions électroniques sont dominantes. Avec la valeur de E/N choisie par Nhigan [16], on trouve pour 1 torr de CO₂, une constante de temps de 200 μ s, soit $P_2' = 5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$.

Il faut également tenir compte de l'excitation du niveau v_3 par les transferts d'énergie V-V dus à l'azote activé. La constante de temps de ce processus est voisine de la précédente [17]. Ce sont donc deux processus extrêmement lents. Il existe d'autres processus qui sont moins efficaces mais beaucoup plus rapides. Par exemple Sharma [17] propose le mécanisme suivant :

Il estime la constante de temps de ce processus à 200 ns, soit $P_2'' = 5 \times 10^6 \text{ s}^{-1} \text{ torr}^{-1}$. Dans le même ordre d'idée, Burak [18] a mesuré la constante de temps de l'équation collisionnelle suivante :

Il a obtenu la valeur P_2 très voisine de l'estimation de Sharma. Ces processus sont certainement peu actifs étant donné le nombre faible de molécules dans $2v_3$ et $v_3 + v_2$. Mais étant très rapides, ils pourraient certainement modifier quelque peu la forme de l'impulsion. Pour introduire dans notre méthode de calcul ces nouveaux mécanismes, il faudrait ajouter à notre système une équation sur l'évolution de la population de $2v_3$ et une sur celle de $v_3 + v_2$. Ce travail est en cours. Jusqu'ici nous admettons que seuls les processus lents déterminent l'excitation de CO₂ et dans les conditions de fonctionnement de notre tube, le temps T entre impulsions nous a conduit à choisir :

$$P_2 = 3 \times 10^{+4} \text{ s}^{-1}.$$

Pour V_1 , les processus sont au moins aussi complexes. Ici il s'agit de la relaxation du niveau v_1 . En général, on admet quelle s'opère par transferts d'énergie vers le niveau v_2 . La constante de temps de ce mécanisme est voisine de 1 ms pour 1 torr de CO₂ [19]. Mais dans un régime impulsif, il peut arriver que v_1 se trouve très surpeuplé par rapport au niveau voisin $2v_2$. Or ces deux niveaux sont couplés par une forte résonance de Fermi qui rend le passage de l'un à l'autre très probable sous l'effet d'une collision. Un schéma de relaxation vraisemblable consiste donc à admettre que si une impulsion laser se déclenche sur la transition v_3-v_1 , v_1 se trouve surpeuplé par rapport à $2v_2$. Très rapidement les deux niveaux se remettent en équilibre entre eux. Donc v_1 et $2v_2$ sont tous deux surpeuplés et la relaxation vers v_2 les remet lentement en équilibre thermodynamique. Un tel processus nécessite également l'écriture de deux nouvelles équations d'évolution, une pour v_2 et une pour $2v_2$. Ce système sera utilisé pour interpréter le Q-switch passif produit par CO₂ lui-même. Ici nous utilisons comme seul processus de relaxation celui vers $2v_2$. Nous avons

choisi pour V_1 l'expression expérimentale fournie par Stark [20], en fonction des constituants du plasma :

$$V_1 = 1,4 \times 10^5 \times (P_{\text{CO}_2} + 0,4 P_{\text{N}_2} + 0,05 P_{\text{He}}) = 9 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$$

pour les conditions de pression de notre tube.

Les valeurs de V_1 et P_2 choisies permettent de rendre compte des impulsions régulièrement espacées. Le temps $t = T - \theta$ mesuré sur la reconstitution est de 140 μ s, en accord avec l'expérience (Fig. 5).

Nous avons pu constater que pour un coefficient de pertes donné, t est presque exclusivement déterminé par le choix de V_1 et P_2 . Le jeu de valeurs choisies est le seul qui donne une forme très réaliste de l'impulsion et qui fournit une valeur satisfaisante de t . Nous pensons donc avoir, sur ce point approché la réalité d'assez près.

4.2 RÔLE DE LA RELAXATION ROTATIONNELLE DANS CO₂. — Bien que nous disposions d'excellentes et nombreuses mesures de ce paramètre, nous avons cherché à définir son rôle dans la forme de l'impulsion.

FIG. 6. — Influence du paramètre de relaxation rotationnelle de CO₂ sur la forme de l'impulsion.

La figure 6] présente la partie centrale de la reconstitution. Seul le paramètre R_M a varié d'une courbe à l'autre. Nous ne présentons, pour la clarté du dessin, que les courbes correspondant aux valeurs extrêmes de R_M parmi celles que nous avons testées. On constate que si R_M est trop faible, il se produit un creux entre l'impulsion principale et le début de la traîne. Par contre pour des valeurs de R_M plus élevées, la décroissance est monotone. On constate que la traîne commence d'autant plus tôt que R_M est grand. L'influence de terme R_M est donc très importante, bien qu'il ne modifie pas de façon fondamentale la forme de l'impulsion, tout au moins dans le domaine de variation où nous l'avons étudiée. Il faut signaler que l'on peut observer expérimentalement les formes présentées sur cette figure en faisant varier les pressions des constituants de la décharge (Photo 3).

PHOTO 3. — Impulsion observée avec une proportion d'azote plus faible dans la composition du mélange amplificateur.

4.3 RÔLE DE LA PRESSION D'ABSORBANT SATURABLE. — La pression d'absorbant saturable joue un rôle double : elle change le terme de relaxation rotationnelle :

$$R_N = R_N^0 p$$

et elle change les populations N_1 , N_2 , N_{J_1} , N_{J_2} . Nous constatons que $\text{Log } \theta$ est, comme dans l'expérience, inversement proportionnel à p (Fig. 2). En ajustant la valeur de R_N^0 , on peut espérer obtenir une droite dont la pente soit égale à celle de la droite expérimentale. La mesure expérimentale de $\text{Log } \theta$ en fonction de la pression peut apparaître comme une méthode d'estimation de la valeur de R_N dans le cas de molécules aussi complexes que SF_6 ou BCl_3 pour lesquelles on ne dispose pas de mesures expérimentales des largeurs des raies de vibration-rotation. D'autre part, nous avons fait un calcul dans lequel nous avons maintenu la pression constante, et nous avons fait varier le coefficient R_N^0 seulement. Si nous portons $\text{Log } \theta$ en fonction de R_N^0 , nous obtenons la même loi de variation que dans le test précédent. Nous devons donc conclure que le paramètre qui détermine la forme et la durée de la traîne est uniquement le terme de relaxation rotationnelle.

4.4 ÉVOLUTION DES POPULATIONS. — Les évolutions au cours du temps de N_{J_1} , N_{J_2} , M_{J_1} et M_{J_2} sont présentées sur les figures 7 et 8 ; les figures 7a et 7b représentent l'évolution pendant une impulsion.

FIG. 7 (a)

FIG. 7. — Evolution, pendant la durée d'une impulsion, des populations des niveaux rotationnels : a) Dans l'amplificateur. b) Dans l'absorbant saturable.

FIG. 8. — Evolution des populations des niveaux rotationnels inférieurs et supérieurs : a et b dans l'amplificateur ; c et d dans l'absorbant saturable (Δ début de l'impulsion), ($\times$ fin de la traîne).

Au départ, l'absorbant est dans son état d'équilibre thermodynamique (absorption maximale). Le milieu amplificateur est en état d'amplification maximale et les populations M_{J_1} et M_{J_2} sont à leur valeur stationnaire $M_{J_1}^*$ et $M_{J_2}^*$. D'autre part la densité de photons est pratiquement nulle : il n'y a pas d'effet laser. Cette situation se rencontre si un écran opaque est placé dans la cavité. Si on retire cet écran, l'effet laser se construit. Dès que la densité de photons atteint un niveau suffisant, on constate que M_{J_2} diminue et que M_{J_1} augmente ce qui entraîne une diminution de l'amplification. De même N_{J_1} et N_{J_2} évoluent très rapidement, l'absorbant devient transparent. Donc le gain global augmente et l'énergie laser croît de plus en plus vite jusqu'au moment où l'amplification atteint un minimum qui est inférieur aux pertes fixes de la cavité. L'impulsion a atteint son sommet et va s'éteindre puisque les pertes surpassent le gain. Remarquons qu'à cet instant, l'absorbant est entièrement transparent. La décroissance s'amorce mais sera freinée par une remontée de M_{J_2} et une légère rechute de M_{J_1} qui sont dues à la relaxation rotationnelle du gaz carbonique. L'énergie laser décroît alors très lentement : c'est la traîne de l'impulsion. Pendant tout ce temps, les pertes excèdent très peu l'amplification. L'absorption augmente très lentement. Puis les pertes vont l'emporter nettement sur le gain et le laser s'éteint. Pendant l'extinction, N_{J_1} et N_{J_2} reviennent à leur état d'équilibre. M_{J_1} revient également très vite à sa valeur station-

naire $M_{J_1}^*$. Sous l'action du pompage, M_{J_2} augmente jusqu'à ce que le phénomène laser puisse s'amorcer alors que la valeur $M_{J_2}^*$ n'est pas encore atteinte. L'impulsion suivante se déclenche alors, mais pour cette raison, elle n'atteint pas la puissance crête de la première. Le cycle se reproduit et toutes les impulsions suivantes sont identiques à la seconde. Dans un régime impulsif stable, on n'observe jamais la première impulsion. C'est pourquoi dans nos calculs nous utilisons toujours la seconde impulsion comme représentation de la réalité.

L'étude que nous avons entreprise du déclenchement passif, nous a permis de préciser l'importance des différents phénomènes de relaxation dans l'absorbant et dans l'amplificateur.

Grâce au programme de reconstitution que nous avons mis au point, nous avons la possibilité d'atteindre les valeurs des paramètres intervenant dans le déclenchement passif provoqué par un absorbant saturable. Ainsi nous avons déterminé la constante de relaxation rotationnelle dans SF₆.

Cette méthode de calcul est utilisée actuellement dans le cas d'autres molécules telles que CH₃Cl, CH₃Br, C₃H₄, CO₂ chauffé, avec lesquelles nous avons réalisé des expériences de déclenchement passif.

D'autre part, le programme sera complété afin de reconstituer des impulsions délivrées par un TEA laser et de prévoir leur amplification par des plasmas.

Bibliographie

- [1] WOOD, O. R., SCHWARZ, S. E., *Appl. Phys. Lett.* **11** (1967) 88-89.
- [2] KARLOV, N. V., KUZ'MIN, G. P., PETROV, YU. N., PROKHOROV, A. M., *JETP Lett.* **7** (1968) 134-136.
- [3] BURAK, I., HOUSTON, P., SUTTON, D. G., STEINFELD, J. I., *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE 7** 2 (1971) 73-82.
- [4] FLYNN, G. W., KOVACS, M. A., RHODES, C. K., JAVAN, A., *Appl. Phys. Lett.* **8** (1966) 63-65.
- [5] SZABO, A., STEIN, R. A., *J. Appl. Phys.* **36** (1965) 1562-1566.
- [6] HOFELICH-ABATE, E., HOFELICH, F., *J. Appl. Phys.*, **39** (1968) 4823-4827.
- [7] LACOME, N., BOULET, C., ARIÉ, E., *Can. J. Phys.* **51** (1973) 302-310.
- [8] GRAY, L. D., SELVIDGE, J. E., *J. Q. S. R. T.* **5** (1965) 291-301.
- [9] CHÉO, P. K., ABRAMS, R. L., *Appl. Phys. Lett.* **14** (1969) 47-49.
- [10] LÉCUYER, A., Thèse Université Paris VI (1974).
- [11] JACOBS, R. R., PETTIPiece, K. J., THOMAS, S. J., *Appl. Phys. Lett.* **24** (1974) 375-377.
- [12] BAILLY, D., GAULTIER, D., ROSSETTI, C., BARCHEWITZ, P., *Can. J. Phys.* **50** (1972) 2605-2613.
- [13] STEINFELD, J. I., BURAK, I., SUTTON, D. G., NOWAK, A. V., *J. Chem. Phys.*, **52** (1970) 5421-5434.
- [14] PATEL, C. K. N., SLUSHER, R. E. S., *Phys. Rev. Lett.* **18** (1967) 1019-1022.
- [15] BURAK, I., STEINFELD, J. I., SUTTON, D. G., *J. Q. S. R. T.* **9** (1969) 959-980.
- [16] NHIGAN, W. L., *Phys. Rev.*, **A-2** (1970) 1989.
- [17] SHARMA, R. D., *Phys. Rev.* **177** (1969) 102.
- [18] BURAK, I., NOTER, Y., SZÖKE, A., *IEEE J. Quantum Electron.* **QE 9** (1972) 541.
- [19] BULTHUIS, K., PONSEN, G. J., *IEEE J. Quantum Electron.* **QE 8** (1972) 597.
- [20] STARK, E. E. Jr., *Appl. Phys. Lett.* **23** (1973) 335.
- [21] MEYER, F., DUPRÉ, J., MEYER, C., *J. Mol. Spectros.* **55** (1975) 28-30.