

MODES PÉRIPHÉRIQUES DANS UN LASER A CHELATE

Par Y. H. MEYER,

Laboratoire de Physique de l'École Polytechnique, Paris.

Résumé. — On a comparé la luminescence émise dans l'axe de la cuve cylindrique, et par la face latérale d'un laser à chélate. Les différences dans les oscillogrammes obtenus montrent l'existence d'une superfluorescence axiale et d'une émission stimulée latérale, nettement distinctes de l'émission stimulée longitudinale normale. On conclut à l'existence de modes périphériques obtenus par réflexions sur le dioptre cylindrique liquide-silice.

Abstract. — We have compared the luminescence emitted on the axis of the cylindrical cell and by the lateral face of a chelate laser. The difference in the oscillograms obtained shows the existence of an axial superradiance and of a lateral stimulated emission clearly distinct from the normal longitudinal stimulated emission. We conclude that there are peripheral modes, obtained by reflection at the cylindrical liquid-silica interface.

1. L'émission laser de différents benzoylacétones d'euporium en solution a été décrite par plusieurs auteurs [1, 2, 3, 4]. Il a été signalé dans le dernier de ces articles qu'en plus de l'émission laser normale, il a été observé une deuxième émission de caractéristiques différentes :

1° un seuil inférieur de 30 % environ ;

2° une intensité apparente très faible (quand on observe dans l'axe de la cuve) ;

3° un oscillogramme présentant des pics irréguliers (au lieu des oscillations régulières souvent obtenues avec une cavité confocale).

Pour rendre compte de cette nouvelle émission, on avait supposé l'existence de modes « périphériques » de la cavité. Les observations complémentaires que l'on rapporte ci-dessous confirment cette hypothèse en démontrant l'existence d'une émission latérale relativement importante.

2. **Dispositif expérimental.** — On a observé simultanément la lumière émise par le chélate dans l'axe d'une cavité confocale de type normal [4], et par la face latérale du cylindre. Le tube de silice (de diamètre intérieur 4 mm et extérieur 6 mm) qui contient la solution de chélate est poli intérieurement. L'émission latérale est recueillie

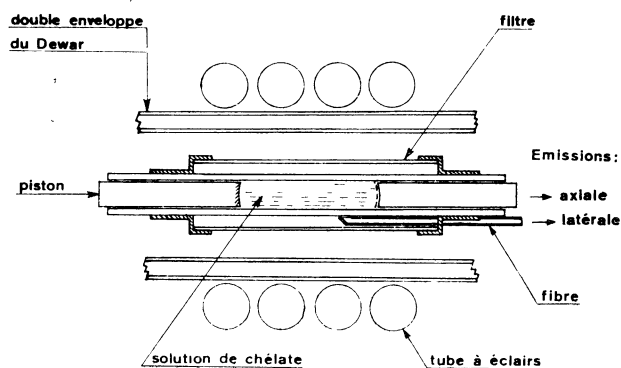


FIG. 1.

par une fibre en pyrex dans laquelle la lumière ne peut pénétrer que par une fenêtre de $\sim 1 \text{ mm}^2$ appliquée contre la cuve. Chacune des deux émissions est reçue par un photomultiplicateur muni d'un filtre interférentiel ou d'un monochromateur (fig. 1 et 8).

Deux types de benzoylacétones ont été utilisés : B_4EuNa [4] et B_4EuP [1] respectivement dans les solvants I et II ($\text{B} = \text{C}_6\text{H}_5\text{COCHCOCH}_3^-$ et $\text{P} = \text{pipéridine}$).

TABLEAU I

INDICES DES SOLVANTS A BASSE TEMPÉRATURE ($\lambda \sim 6100 \text{ \AA}$)				
SOLVANTS		INDICE A 20 °C	INDICE A - 150 °C	$\frac{dn}{d\theta} \text{ °C}^{-1}$
I	Éthanol : 15	1,384	1,464	$(5 \pm 0,5) \times 10^{-4}$
	Diméthylformamide : 8			
	Méthanol : 5			
II	Éthanol : 3	1,353	1,445	
	Méthanol : 1			

Des estimations des indices à 6 100 Å de ces solvants ont été faites à partir des mesures de déviation dans un prisme de liquide refroidi, pour les raies 5 893 Å et 5 460 Å. L'indice de la silice reste égal à 1,458. (Tableau I).

3. Résultats. — Des observations similaires ont été faites avec les deux chélates. Les figures 2 à 5 montrent les oscillogrammes obtenus avec le benzoylacétate d'euporium et de sodium, et la figure 6 avec le benzoylacétate d'euporium et de pipéridine.

Oscillogrammes de l'émission stimulée du benzoylacétate d'euporium et de sodium dans le solvant I (fig. 2 à 5) et du benzoylacétate d'euporium et de pipéridine dans le solvant II (fig. 6).

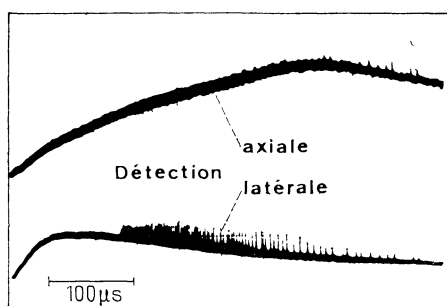


FIG. 2. — 1 300 J. Déformation de la courbe de fluorescence axiale. Quelques petits pics sont visibles sur la détection axiale.

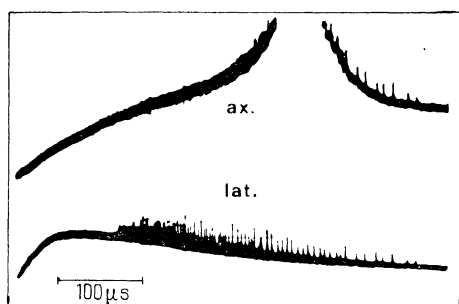


FIG. 3. — 1 400 J. Superfluorescence très nette dans l'axe de la cuve.

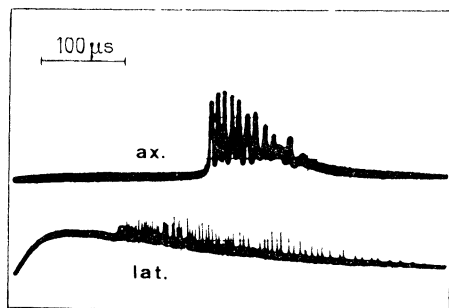


FIG. 4. — 1 600 J. La sensibilité de la détection axiale est beaucoup plus faible qu'en 2 et 3 et ne laisse voir que le laser longitudinal.

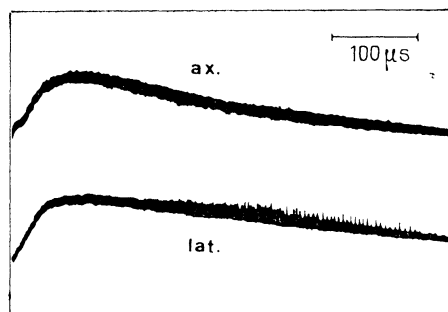


FIG. 5. — 2 400 J. Sans couches réfléchissantes, le laser et la superfluorescence sont supprimés. Les petits pics se produisent cependant et sont visibles sur la détection latérale.

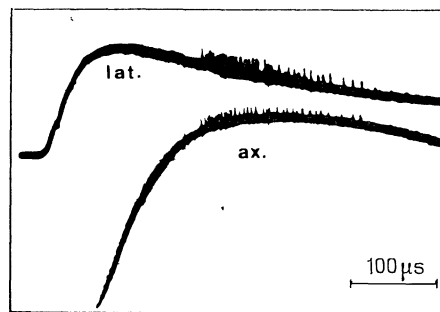


FIG. 6. — 1 400 J. La sensibilité de la détection axiale a été augmentée pour faire apparaître plus nettement les petits pics. La correspondance pic à pic sur les deux traces est évidente (le léger décalage est dû à celui des origines).

a) DÉFORMATION DES OSCILLOGRAMMES DE LA FLUORESCENCE. — La différence de forme des courbes de fluorescence observées dans l'axe de la cuve ou dans une direction perpendiculaire met en évidence une « superfluorescence », c'est-à-dire une émission stimulée directionnelle mais continue, au voisinage du seuil laser, très nette sur la figure 3 et déjà visible sur la figure 2. Quelle que soit l'énergie du pompage, la fluorescence observée latéralement a, au contraire, la même forme.

En réalité, la lumière parasite du flash n'est pas totalement éliminée par la détection latérale. Sa participation est néanmoins faible (fig. 7).

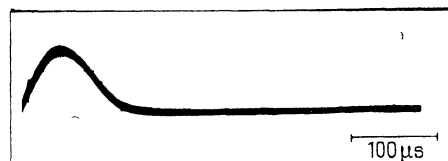


FIG. 7. — Courbe de l'intensité de la lumière ultraviolette excitatrice du tube éclair au xénon à 2 400 J.

Lorsqu'on supprime les surfaces réfléchissantes, la courbe de fluorescence observée dans l'axe reprend une forme normale, même à forte énergie

(fig. 5) et reste alors semblable à l'émission latérale (la lumière parasite du flash est alors plus importante).

La déformation de la courbe de fluorescence due à l'émission stimulée ne doit pas être confondue avec les formes anormales obtenues sous fort pompage avec un chélate non apte au laser.

b) EXISTENCE DE PICS D'ÉMISSION LATÉRALE. — Les pics d'émission stimulée visibles sur les courbes de fluorescence spontanée apparaissent parfois simultanément sur la détection axiale et sur la détection latérale. L'exacte correspondance dans le temps de certains pics sur les deux traces, qu'on peut remarquer (fig. 2, 3 et 4), montre qu'il s'agit bien de la même émission. Dans la figure 2 et 3, les premiers pics sur la trace supérieure sont confondus dans le bruit du photomultiplicateur.

c) CARACTÉRISTIQUES NETTEMENT DISTINCTES DES ÉMISSIONS LONGITUDINALE ET LATÉRALE. — En plus des différences du seuil, de forme et d'intensité, les deux émissions n'ont pas la même direction. L'émission laser normale (longitudinale) n'est absolument pas visible, malgré son intensité, par la détection latérale (fig. 4). L'émission latérale n'est donc pas interprétable par diffusion de l'émission axiale. Enfin, la figure 5 montre qu'on peut avoir émission stimulée latérale même lorsqu'on a supprimé les couches réfléchissantes. On a vérifié que le seuil n'en est pas modifié.

4. Discussion. — L'observation d'une émission stimulée *latérale* conduit donc à admettre l'existence de modes *transverses*. Par réflexions successives sur le dioptre liquide-silice, on peut envisager la formation de modes *périphériques* localisés dans la région où l'excitation est précisément la plus intense. Des modes analogues ont déjà été envisagés dans une sphère de rubis (« Whispering modes ») [5]. Dans notre cas, les réflexions sur le dioptre silice-air ne peuvent intervenir avec les diamètres utilisés. Par contre, une fraction appréciable de la lumière est toujours réfléchi à l'incidence rasante sur le dioptre liquide-silice, quel que soit l'indice relatif, si on considère un angle d'attaque suffisamment faible.

Dans le cas du solvant I, la réflexion totale est

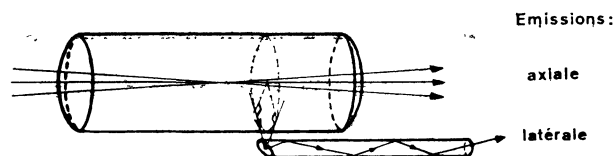


FIG. 8.

possible à -150 °C. L'existence d'un mode *périphérique* à faible perte serait donc possible. Avec le solvant II, au contraire, il ne semble pas que l'indice, à froid soit supérieur à celui de la silice. La différence d'indice est de l'ordre de 1 %. La variation du coefficient de réflexion R d'un dioptre tel que $\Delta n/n = 1$ % en fonction de l'angle d'attaque α est donné ci-dessous. Les deux polarisations sont traitées dans ce cas presque identiquement (à 1 % près).

α	10'	30'	1°	2°	4°
R %	92	78	61	37	17

Les coefficients élevés obtenus aux petits angles correspondent à des trajets d'amplification très courts si le mode est dans un plan de section droite. D'autre part, des modes inclinés sur l'axe de la cuve devraient s'appuyer sur les miroirs extrêmes, ce qui ne semble pas être le cas. Cette émission reste observable en l'absence de miroirs (fig. 5).

Il reste à établir dans chaque cas si le gain, entre deux réflexions successives, est suffisant pour avoir amplification de l'onde. Ce point sera difficile à déterminer car le pompage des chélates est extrêmement inhomogène en profondeur, en raison du très fort coefficient d'absorption moléculaire de ces composés. Ce même fait peut, d'autre part, laisser penser que des gains exceptionnellement élevés sont possibles dans la couche périphérique du chélate, qui absorbe une grande partie de l'énergie d'excitation.

Cette technique pourrait constituer un moyen commode de recherche de l'émission stimulée dans les liquides.

L'auteur remercie M. Orszag pour de profitables discussions, M. Simon et M^{me} Vahlas pour leur assistance dans les manipulations.

Manuscrit reçu le 8 juin 1965.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] LEMPICKI et SAMELSON, *Physics Letters*, 1963, **4**, 133 ; *J. Chem. Physics*, 1964, **41**, 1214.
 [2] SCHIMITSCHEK, *Appl. Physics Letters*, 1963, **3**, 117.
 [3] BRAUMIK, FLETCHER, NUGENT, LEE, MIGA, TOLK et WEINBERG, *J. Phys. Chem.*, 1964, **68**, 1490.
 [4] MEYER, ASTIER et SIMON, *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1964, **259**, 4604.
 [5] GARRET, KAISER et BOND, *Phys. Rev.*, 1961, **124**, 1807.