

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

②①

N° 80 11064

⑤④ Procédé et dispositif d'obtention de faisceaux lumineux monochromatiques par diffusion stimulée.

⑤① Classification internationale (Int. Cl. ³). G 02 F 1/39; H 01 S 3/30.

②② Date de dépôt..... 16 mai 1980.

③③ ③② ③① Priorité revendiquée :

④① Date de la mise à la disposition du
public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 47 du 20-11-1981.

⑦① Déposant : CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE, administration d'Etat,
établissement public, résidant en France.

⑦② Invention de : François Philippe Louis Pradere et Robert André Serge Frey.

⑦③ Titulaire : *Idem* ⑦①

⑦④ Mandataire : Cabinet Plasseraud,
84, rue d'Amsterdam, 75009 Paris.

Procédé et dispositif d'obtention de faisceaux lumineux monochromatiques par diffusion stimulée.

L'invention a pour objet un procédé et un dispositif d'obtention d'un faisceau de lumière monochromatique à très faible largeur de raie et elle trouve une application particulièrement importante, bien que non exclusive, en photochimie. On sait en effet que l'obtention de faisceaux lumineux intenses ayant une largeur de raie aussi réduite que possible présente un grand intérêt dans de nombreux domaines de la photochimie, en particulier pour effectuer des opérations de séparation isotopique ou de purification.

Or les techniques connues de réduction de largeur de raie font appel à des appareils de filtrage passif, tels que monochromateurs à prismes, monochromateurs à réseaux, filtres interférentiels, étalons de fabry-perot, qui ne permettent de diminuer la largeur de raie qu'en réduisant dans des proportions encore plus importantes l'intensité lumineuse du faisceau. En conséquence toute opération de filtrage passif se traduit par une diminution de l'intensité monochromatique, définie comme le rapport de l'intensité lumineuse à la largeur de raie.

L'invention vise à fournir un procédé et un dispositif permettant d'obtenir un faisceau de lumière intense et de très faible largeur de raie, le terme "lumière" devant être interprété dans un sens très large, et comme désignant toute la zone du spectre recouvrant l'infrarouge, le visible et l'ultraviolet (c'est à dire approximativement de 100 nm à 100 μ m).

Dans ce but l'invention propose notamment un procédé caractérisé en ce qu'on superpose, dans un milieu amplificateur présentant une raie large d'émission stimulée de lumière, un faisceau de lumière à faible largeur de raie et à une première fréquence et un faisceau de lumière généralement pulsée à une seconde fréquence, différente de la première, la première fréquence étant contenue dans la raie d'émission stimulée induite dans le milieu par la première fréquence.

Un tel procédé permet d'atteindre deux résultats :

- l'intensité du faisceau de rayonnement lumineux à la première fréquence peut être considérablement accru sans dégradation sensible de la largeur de raie,

5 ce qui se traduit par une augmentation de l'intensité monochromatique ;

- On transfère une fraction notable de l'énergie du faisceau à la seconde fréquence, dont la largeur spectrale peut être importante, au faisceau à la première fréquence, de largeur spectrale étroite, c'est - à - dire
10 qu' on peut réaliser une compression spectrale avec un rendement de transfert relativement élevé.

Il est important de remarquer que le procédé revendiqué est totalement différent de ceux qui utilisent une diffusion
15 stimulée de lumière pour effectuer un déplacement de fréquence. Ces derniers procédés mettent en oeuvre une amplification du bruit propre du système de sorte que les caractéristiques spectrales du rayonnement obtenu dépendent de la largeur de raie $\Delta\sigma_T$ de la transition mise en oeuvre dans le milieu et de
20 la largeur de raie de l'onde de pompe $\Delta\sigma_p$. Au contraire, dans le procédé défini ci-dessus, on injecte un signal très monochromatique, de largeur $\Delta\sigma_s$ pouvant être très inférieur à $\Delta\sigma_p$ et dont la fréquence se trouve à l'intérieur de la région spectrale où l'onde de pompe induit un gain.

25 On peut notamment utiliser un milieu amplificateur présentant un phénomène de diffusion Raman. Le second faisceau constitue alors le faisceau de pompe. Le premier présentant une largeur de raie beaucoup plus faible que celle de la transition est à une fréquence égale ou voisine de celle de la raie Stokes qui serait
30 induite par le faisceau de pompe si le gain était suffisant. Les deux faisceaux peuvent être fournis par des lasers pulsés.

Au lieu d'utiliser la diffusion stimulée de lumière par effet Raman, on peut utiliser d'autres processus, et notamment la diffusion Rayleigh (diffusion sans changement de fréquence)
35 ou la diffusion Brillouin. Il faut d'ailleurs remarquer que la mise en oeuvre de l'invention par effet Raman implique d'éviter d'atteindre le seuil d'apparition de l'effet Brillouin, étant donné qu'il apparaîtrait dans le cas contraire une compétition

entre les deux effets.

Bien que les lasers constituent des sources de rayonnement particulièrement adaptées à la mise en oeuvre de l'invention, on peut envisager l'emploi de toute autre source de rayonnement monochromatique cohérent dans le spectre utile, par exemple les oscillateurs paramétriques.

L'invention propose également des dispositifs permettant de mettre en oeuvre le procédé ci-dessus défini. L'invention sera mieux comprise à la lecture de la description qui suit de tels dispositifs, constituant des modes de mise en oeuvre particuliers, et du procédé qu'ils mettent en oeuvre. La description se réfère à la figure unique qui l'accompagne et qui est un schéma de principe d'un dispositif.

Le dispositif montré sur la figure utilise un milieu amplificateur susceptible de présenter une diffusion Raman stimulée, constitué par exemple par un mélange d'hydrogène et d'argon sous pression réglable. Ce mélange est contenu dans une cuve dont la longueur est, dans le dispositif décrit, suffisante pour éviter des oscillations dues à des réflexions multiples au cours d'une même impulsion. Une longueur de un mètre est satisfaisante pour des impulsions de 2,5 ns. En utilisant un mélange de 2/3 d'hydrogène et 1/3 d'argon sous une pression variable de 1 à 100 bars on peut faire varier notablement la largeur de raie $\Delta\sigma_T$ du mélange pour la transition Q1 de l'hydrogène.

Le faisceau d'apport d'énergie ou faisceau de pompe, à la seconde fréquence mentionnée plus haut, est fourni par un laser pulsé. Ce laser est dans ce cas du type à colorant et à plusieurs étages (un étage oscillateur et au moins un étage amplificateur). La largeur de raie de l'onde de pompe $\Delta\sigma_P$ doit être inférieure à $\Delta\sigma_T$. La fréquence de l'onde de pompe peut évidemment varier dans de larges limites. A titre d'exemple, on peut indiquer qu'on a utilisé un laser à colorant pour lequel $\Delta\sigma_P$ se situe entre 0,043 et 0,41 cm^{-1} et pour lequel $\sigma_P = 13900 \text{ cm}^{-1}$, alors que $\Delta\sigma_T$ était compris entre 0,40 et 0,55 cm^{-1} . Le laser 12 comportera généralement un élément pour ajuster la largeur de raie, tel qu'un étalon fabry-pérot 13.

Le faisceau d'extraction d'énergie, à la première fréquence mentionnée plus haut, pourra être fourni par un laser

à colorant 14 similaire au laser 12 et déclenché en synchronisme avec lui. Les lasers 12 et 14 peuvent être excités par la même source de pompage, constituée par exemple par un laser à rubis. Le laser 14 comportera au moins un élément dispersif 15 de réglage de la longueur d'onde et de la largeur de raie. Il devra être accordé pour émettre sur une longueur d'onde correspondant à la raie Stokes qui serait créée par le faisceau de pompage si le gain était suffisant. Dans le cas envisagé plus haut d'un laser 12 pour lequel $\sigma_P = 13900 \text{ cm}^{-1}$, on pourra adopter, pour le laser 14, $\sigma_S = 9750 \text{ cm}^{-1}$ et $\Delta\sigma_S$ compris entre 0,013 et 0,017.

Des moyens optiques doivent être prévus pour rendre les faisceaux de sortie des lasers 12 et 14 colinéaires dans la cuve 11. Sur la figure, ces moyens sont constitués par un premier miroir 16 de renvoi du faisceau d'extraction d'énergie et un miroir 17 transparent pour la longueur d'onde de pompe et réfléchissant pour la longueur d'onde d'extraction d'énergie (miroir à couches diélectriques en général). Le laser 14 et surtout le laser 12, qui présente une largeur de raie plus large, peuvent avoir des puissances de crête élevées : des essais ont été effectués avec une puissance de 200 MW/cm² pour le faisceau de pompe et quelques MW/cm² pour le faisceau d'extraction d'énergie. Le tableau ci-dessous donne, à titre d'exemple, des résultats d'essais représentatifs des divers modes d'utilisation que l'on peut envisager :

Essai	$\Delta\sigma_T$ (cm ⁻¹)	$\Delta\sigma_M$ (cm ⁻¹)	$\Delta\sigma_P$ (cm ⁻¹)	Entrée $\Delta\sigma_S$ (cm ⁻¹)	Sortie $\Delta\sigma_S$ (cm ⁻¹)	A	R (%)	T
1	0,40	0	,043	,017	,016	9	80	1,4
2	0,40	0,32	,043	,017	,018	8	54	1
3	0,40	0	,043	,017	,017	500/3000	2-15	0,03 -0,26
4	0,55	0	,41	,013	,013	7	72	16

Dans le tableau ci-dessus, $\Delta\sigma_T$, $\Delta\sigma_P$ et $\Delta\sigma_S$ ont les significations mentionnées plus haut ; A désigne l'amplification obtenue, c'est à dire le rapport entre l'intensité de l'onde signal à la sortie de la cuve 11, à la fréquence de la raie

Stokes, et l'intensité du faisceau d'extraction d'énergie. R désigne le rendement quantique de conversion. Enfin T désigne le taux de compression spectrale obtenu, défini comme :

$$T = (\Delta\sigma_p/\Delta\sigma_s) \times (\sigma_s/\sigma_p) \times R.$$

La valeur de ce taux de compression spectrale reflète le transfert d'énergie du faisceau de pompe, à spectre relativement large, vers le faisceau signal, spectralement étroit.

Les essais résumés sur le tableau ont été choisis pour faire apparaître les différentes possibilités offertes par l'invention.

Dans tous les cas, on constate qu'après amplification ($\Delta\sigma_s$) à la sortie de la cuve 11 n'est pas sensiblement augmenté par rapport à ($\Delta\sigma_s$) à l'entrée, même lorsque la largeur de raie de la transition Raman $\Delta\sigma_T$ est grande par rapport à $\Delta\sigma_s$.

L'amplification peut être extrêmement variable. Elle n'est limitée que par la dépopulation de l'onde de pompe. Elle dépend à la fois de l'intensité de l'onde de pompe et de celle de l'onde d'extraction d'énergie. L'amplification et le rendement varient en sens inverse.

Amplification maximum : pour certaines applications, on peut souhaiter obtenir des amplifications très élevées. Dans le cas de l'essai 3, on arrive à des valeurs de l'ordre de 3000, en adoptant une faible intensité du faisceau d'extraction d'énergie. En contrepartie, le rendement quantique est faible.

Rendement quantique élevé : pour d'autres applications on peut rechercher des rendements quantiques aussi élevés que possible. Ce résultat est atteint pour des amplifications faibles. Il peut atteindre 80% (essai 1) et même le dépasser à condition d'avoir des faisceaux lumineux très homogènes.

Taux de compression spectrale élevé : pour d'autres applications encore, il faut rechercher une compression spectrale aussi importante que possible, c'est à dire une augmentation du rapport entre la largeur de raie et l'inten-

sité, même au prix d'une réduction de l'intensité. L'essai 4 montre que ce résultat est atteint en utilisant un milieu Raman présentant une largeur de raie de transition particulièrement importante.

- 5 Possibilité d'accord : l'essai 2 montre qu'il n'est pas indispensable que la longueur d'onde du faisceau d'extraction d'énergie corresponde exactement à la raie Stokes, car la raie de transition Raman est relativement large. Dans le cas de l'essai 2, la différence $\Delta\sigma_M = \sigma_P - \sigma_S$ était de $0,32 \text{ cm}^{-1}$.
- 10 Néanmoins, le rendement quantique n'était réduit que dans un rapport relativement faible. Cette possibilité d'accord présente un grand intérêt lorsque le faisceau de pompe est fourni par un laser qui ne peut fournir que des fréquences discrètes, tel qu'un laser à CO₂. Dans ce cas on peut accorder la fréquence Stokes à l'intérieur de la raie Raman par action sur
- 15 le dispositif d'accord du laser d'extraction d'énergie 14.

Amplification élevée et rendement quantique acceptable : il est possible de concilier ces deux résultats en utilisant un système à plusieurs étages dont le premier étage au moins

20 fournit une valeur élevée de A et le dernier étage au moins est prévu pour fournir une valeur élevée de R.

Le taux de répétition des impulsions qu'on peut obtenir n'est pratiquement limité que par celui du laser de pompe et par l'échauffement du milieu Raman. On peut ainsi arriver

25 à des installations fournissant un rayonnement de puissance moyenne élevée et de grande pureté spectrale, avec un rendement satisfaisant.

L'invention ne se limite pas aux modes particuliers de réalisation qui ont été représentés et décrits à titre d'ex-

30 emple ; en particulier elle peut mettre en oeuvre des phénomènes autres que l'effet Raman. La source du faisceau d'extraction d'énergie peut être de n'importe quel type capable de fournir des impulsions lumineuses monochromatiques cohérentes, par exemple une diode laser. La source du fais-

35 ceau de pompe peut être d'un type quelconque à bande large ou étroite (oscillateur paramétrique, laser CO₂, laser HF, etc...) ; au lieu de l'effet Raman on peut envisager l'emploi de la diffusion stimulée de lumière par effet Brillouin, et tout autre processus non linéaire mettant en jeu au moins deux photons.

‡

REVENDICATIONS

1. Procédé de création d'un faisceau de lumière à faible largeur de raie, caractérisé en ce qu'on superpose, dans un milieu amplificateur présentant une raie large d'émission stimulée de lumière, un faisceau de lumière, dit "d'extraction d'énergie", à faible
5 largeur de raie, à une première fréquence, et un faisceau de lumière généralement pulsée à une seconde fréquence, supérieure à la première, la première fréquence étant contenue dans la raie d'émission stimulée du milieu induite par la seconde fréquence.
2. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce
10 que la première fréquence correspond à la raie Stokes de diffusion Raman du milieu.
3. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que la première fréquence est ajustable et contenue dans la raie de transition Raman du milieu induite par la seconde fréquence.
- 15 4. Procédé suivant la revendication 2 ou 3, caractérisé en ce que la largeur de raie du faisceau de pompe est inférieure à la largeur de raie de la transition Raman.
5. Procédé suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que les faisceaux de lumière
20 sont fournis par des lasers fonctionnant en mode pulsé et déclenchés en synchronismes.
6. Dispositif de création d'un faisceau de lumière monochromatique à faible largeur de raie, caractérisé en ce qu'il comprend une cuve de réception d'un milieu présentant une
25 raie large d'amplification induite, une première source pulsée d'extraction d'énergie fournissant un faisceau de lumière à faible largeur de raie à une première fréquence, et une source pulsée de pompe fournissant un faisceau de lumière à une seconde fréquence différente de la première, la pre-
30 mière fréquence étant choisie pour être contenue dans la raie d'amplification induite du milieu soumis à l'action du faisceau de pompe, et des moyens optiques pour rendre les deux faisceaux colinéaires dans la cuve.
7. Dispositif suivant la revendication 6, caractérisé
35 en ce que les sources sont constituées par deux lasers pulsés associés à un même laser de pompage.
8. Dispositif suivant la revendication 7, caractérisé

en ce qu'il est à plusieurs étages, le premier étage au moins étant prévu pour fournir une amplification élevée et le dernier étage au moins étant prévu pour fournir une valeur élevée du rendement quantique de transfert d'énergie du fais-
5 ceau de pompe au faisceau de sortie.

