

PHYSIQUE MOLÉCULAIRE. — *Double irradiation de l'ammoniac par rayonnements infrarouge et hertzien*. Note (\*) de MM. MICHEL FOURRIER, MICHEL REDON, ALAIN VAN LERBERGHE et CHRISTIAN BORDÉ, présentée par M. Alfred Kastler.

On décrit les premiers résultats obtenus dans une expérience de double irradiation de l'ammoniac. L'influence du rayonnement infrarouge d'un laser à gaz carbonique sur les populations des niveaux d'inversion de l'ammoniac est détectée en hyperfréquence.

Les raies d'émission du laser à gaz carbonique situées au voisinage de  $930\text{ cm}^{-1}$  sont pour la plupart fortement absorbées par le gaz ammoniac [(<sup>1</sup>), (<sup>2</sup>)]. Il nous a été possible de réaliser des expériences de double irradiation en induisant des transitions de vibration-rotation dans la

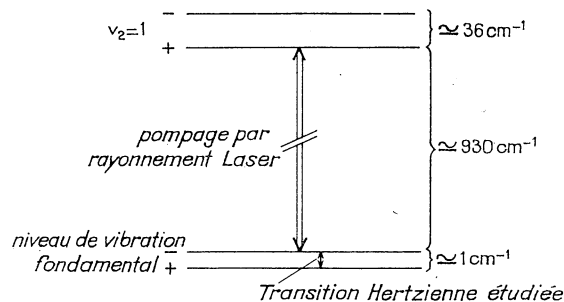


Fig. 1. — Schéma de principe de l'expérience montrant les niveaux d'inversion de l'ammoniac dans l'état fondamental et dans l'état  $v_2 = 1$  pour une valeur donnée de J et K.

bande  $v_2$  de l'ammoniac et en détectant l'influence de cette excitation sur certaines raies du spectre d'inversion du niveau fondamental (fig. 1).

Ces expériences ont été réalisées en utilisant les raies laser P (32) à  $932,96\text{ cm}^{-1}$  et P (34) à  $931,00\text{ cm}^{-1}$  de la transition  $(00^0_1) \rightarrow (10^0_0, 02^0_0)_1$ . Dans ces deux cas la fréquence du centre des raies d'absorption de l'ammoniac ne coïncide pas exactement avec la fréquence du centre de la raie d'émission du laser : une pression minimale est requise pour que l'élargissement des raies puisse entraîner une absorption notable. Le rayonnement laser est absorbé de 10 % sur un parcours de 3 m respectivement à 0,5 et 2 Torr pour les raies P (32) et P (34). Les transitions  $aQ(J, K)$  du gaz ammoniac pour  $J = 3, 4, 5$  et  $K = J - 2$  ont une fréquence centrale voisine de celle de la raie laser P (32). Il en est de même pour la transition  $aQ(3, 3)$  et la raie laser P (34) (<sup>3</sup>).

DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. — Le spectromètre hertzien est du type vidéo, à cellule en guide d'onde RG 53 U. Il permet d'explorer la bande 20 à 31 GHz, c'est-à-dire une grande partie du spectre d'inversion du gaz ammoniac <sup>(1)</sup>. Le rayonnement infrarouge est produit par un laser à gaz carbonique stabilisé <sup>(2)</sup>, ce rayonnement est amplifié avant d'être introduit dans la cellule. Une puissance de l'ordre de 10 W est obtenue à la sortie de l'amplificateur sur la plupart des raies de la branche P de la transition  $(00^0_1) \rightarrow (10^0_0, 02^0_0)_1$  du gaz carbonique. Le faisceau laser est modulé

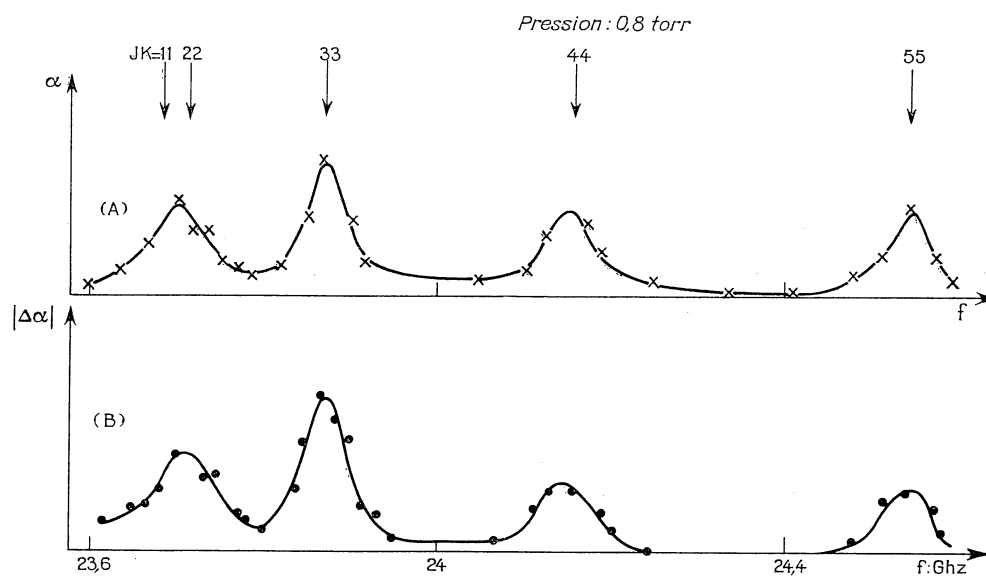


Fig. 2.

en amplitude à une fréquence comprise entre 50 et 2 000 Hz; une détection synchrone à cette fréquence permet d'atteindre les variations d'intensité des raies d'inversion dans le domaine hertzien.

#### RÉSULTATS OBTENUS :

— Toutes les raies d'inversion étudiées sont affectées par le rayonnement laser.

— La variation d'intensité des raies hertziennes correspond toujours à une diminution de l'absorption.

— Les raies d'inversion sont affectées différemment suivant qu'elles possèdent ou non un niveau commun avec une transition infrarouge pompée par le laser.

1° Sur la figure 2 on a représenté en unités arbitraires, d'une part, le spectre d'inversion du gaz ammoniac entre 23,6 et 24,6 GHz (courbe A), d'autre part les variations d'intensité en valeur absolue de ces mêmes raies lorsque le gaz est excité par la raie laser P (32) (courbe B).

Les unités utilisées en ordonnée pour la courbe B sont 200 fois plus grandes que celles utilisées pour la courbe A.

P (32) n'excite aucune des transitions infrarouges possédant un niveau commun avec les cinq transitions hertziennes étudiées sur la figure 2. On constate que toutes les raies d'inversion sont affectées par le rayonnement laser : en effet, aux pressions considérées, le temps de relaxation vibrationnelle due aux collisions étant très court, l'énergie de vibration fournie par le pompage infrarouge est très rapidement transformée en énergie de translation et de rotation. Ceci a pour effet de chauffer le gaz et, compte tenu des valeurs de J et K considérées, de réduire l'intensité des raies d'absorption conformément aux prévisions théoriques. On sait d'ailleurs qu'à pression plus élevée et pour des puissances laser supérieures, un tel chauffage peut produire une dissociation de l'ammoniac (4).

2° Lorsque l'on étudie les transitions hertziennes dont le niveau supérieur est commun à la transition infrarouge pompée par le laser, l'effet de chauffage n'intervient plus seul : il se superpose à un effet de saturation partielle de la transition vibrationnelle produisant une augmentation de l'intensité des raies.

Le tableau suivant montre en particulier le rapport des variations d'intensité  $\Delta\alpha$  (J, K) de trois transitions hertziennes, lorsque le gaz ammoniac est excité par les raies laser P (32) et P (34).

Les transitions hertziennes (4, 1) et (4, 4) ne possèdent pas de niveau commun avec les transitions infrarouges pompées par P (32) ou P (34) : on constate que le rapport de leurs variations d'intensité est indépendant de la raie laser.

Raie laser.	Rapport des variations d'intensité.	
P (32).....	$\frac{\Delta\alpha(4, 4)}{\Delta\alpha(4, 1)} = 10,4$	$\frac{\Delta\alpha(5, 3)}{\Delta\alpha(4, 1)} = 3,3$
P (34).....	$\frac{\Delta\alpha(4, 4)}{\Delta\alpha(4, 1)} = 10,2$	$\frac{\Delta\alpha(5, 3)}{\Delta\alpha(4, 1)} = 5,5$

La transition (5, 3) possède un niveau supérieur commun avec la transition infrarouge  $\alpha Q$  (5, 3) en quasi-coïncidence avec P (32) : dans ce cas la variation d'intensité de la transition hertzienne dépend de la raie laser. La variation d'intensité de la transition (5, 3) est nettement inférieure si on utilise la raie P (32) : c'est donc qu'à l'effet thermique se superpose un phénomène qui réduit celui-ci, c'est-à-dire qui tend à augmenter la différence de population entre les niveaux reliés par la transition hertzienne (5, 3). Cette augmentation de la différence de population est naturellement produite par la saturation partielle de la transition infrarouge considérée. Cette saturation bien que très faible (le coefficient de saturation

est de l'ordre de  $10^{-3}$ ) produit une variation de population non négligeable à cause de la grande valeur du rapport des fréquences infrarouge et hertzienne.

*En conclusion*, notre étude nous a permis de mettre en évidence — outre un effet thermique général — le pompage de certaines transitions infrarouges en détectant la variation de population qui en résulte pour les niveaux hertziens correspondants.

(\*) Séance du 2 février 1970.

(1) C. BORDÉ, A. HENRY et L. HENRY, *Comptes rendus*, 262, série B, 1966, p. 1389.

(2) C. BORDÉ et L. HENRY, *International Quantum Electronics Conference I. E. E. E. (Journal of Quantum Electronics)*, 4 novembre 1968, p. 874-880.

(3) J. S. GARING, H. H. NIELSEN et K. N. RAO, *J. of Molecular Spectroscopy*, 3, 1959, p. 496-527.

(4) TOWNES et SCHAWLOW, *Microwave Spectroscopy*, p. 311.

(M. F. et M. R. :  
*Laboratoire de Résonance magnétique,*  
A. v. L. et Ch. B. :  
*Laboratoire de Spectroscopie moléculaire,*  
*Faculté des Sciences de Paris,*  
9, quai Saint-Bernard, 75-Paris, 5<sup>e</sup>.)