

EXPÉRIENCE DE DOUBLE IRRADIATION DE L'AMMONIAC PAR RAYONNEMENTS INFRAROUGE ET HERTZIEN

par M. FOURRIER (*), M. REDON (*), A. VAN LERBERGHE (**)
et C. BORDÉ (**).

Faculté des Sciences de Paris, 9, quai St-Bernard

Résumé. — On décrit les premiers résultats d'une expérience de double irradiation de l'ammoniac. Le rayonnement infrarouge est produit par un laser à gaz carbonique qui induit des transitions entre les niveaux de vibration-rotation de l'ammoniac. On détecte l'influence de ce rayonnement sur les raies d'inversion de l'ammoniac situées dans le domaine hertzien.

Abstract. — We describe the first results of a double irradiation experiment. The infrared radiation is produced by a CO₂ Laser which induce transitions between vibration-rotation levels of ammonia. The influence of the infrared radiation on the inversion spectrum of ammonia is detected in the microwave region.

Les raies d'émission du laser à gaz carbonique situées au voisinage de 930 cm^{-1} sont pour la plupart fortement absorbées par le gaz ammoniac [1], [2]. Cette absorption est due à la quasi-coïncidence entre les raies d'émission du gaz carbonique et les raies d'absorption de la bande de vibration-rotation ν_2 de l'ammoniac.

Il nous a été possible de réaliser des expériences de double irradiation en induisant des transitions de vibration-rotation entre le niveau fondamental et le premier niveau excité de la vibration ν_2 et en détectant l'influence de cette excitation sur certaines raies du spectre d'inversion du niveau fondamental situé dans le domaine hertzien (Fig. 1).

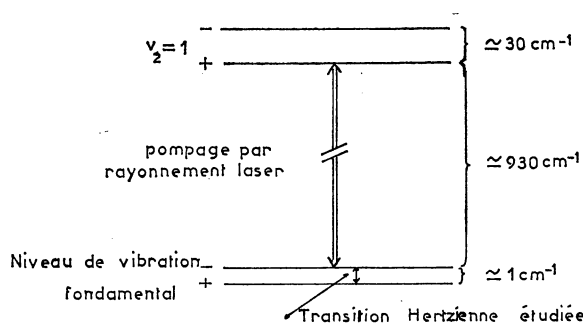


FIG. 1. — Schéma de principe de l'expérience montrant les niveaux d'inversion de l'ammoniac dans l'état fondamental et dans l'état $\nu_2 = 1$ pour J donné et K pair.

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 torrs 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) [3].

Dispositif expérimental — Le spectromètre hertzien est du type vidéo (Fig. 2).

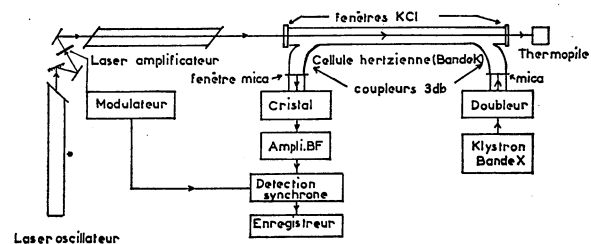


FIG. 2.

La source est un klystron reflex fonctionnant entre 10 et 15,5 GHz suivi d'un doubleur large bande. Ce klystron est muni d'un traqueur de mode qui permet de balayer en fréquence le rayonnement hertzien sur 1 GHz sans variation importante de la puissance au niveau du cristal. La puissance maximale fournie après le doublage de fréquence est de 3 mW. La cellule est constituée par un guide d'onde RG 53 U de 3 m de longueur et par deux coupleurs directs permettant d'introduire et de détecter simultanément les rayonnements infrarouge et hertzien.

(*) Laboratoire de Résonance Magnétique.

(**) Laboratoire de Spectroscopie Moléculaire.

Le rayonnement infrarouge est produit par un laser à gaz carbonique stabilisé [2] ; 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 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. — 1) Toutes les raies d'inversion étudiées sont affectées par le rayonnement laser.

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

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

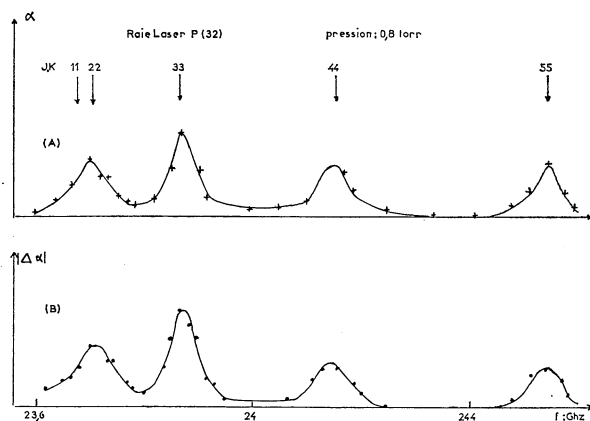


FIG. 3.

1. Sur la figure 3 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 [1].

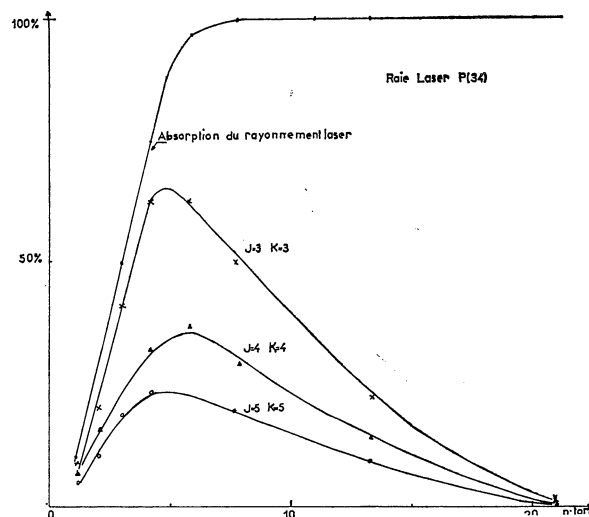


FIG. 4.

2. Sur la figure 4 on a tracé la variation d'intensité des raies hertziennes en fonction de la pression ainsi que le pourcentage d'absorption du rayonnement laser à la sortie de la cellule. Les variations d'intensité sont maximales vers 5 torr pour 90 % d'absorption car pour des pressions supérieures, le faisceau laser ne traverse plus toute la cellule : le signal décroît. Pour la raie P(32) les maxima sont situés vers 2 torr.

3. 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).

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)	$\frac{\Delta\alpha(4,4)}{\Delta\alpha(4,1)} = 10,2$	$\frac{\Delta\alpha(5,3)}{\Delta\alpha(4,1)} = 5,5$

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.

La transition (5,3) possède un niveau supérieur commun avec la transition infrarouge $aQ(5,3)$ en quasi-coïncidence avec P(32) : dans ce cas 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^{-5}) produit une variation de population non négligeable à cause de la grande valeur du rapport des fré-

quences infrarouge et hertzienne. En conclusion notre étude 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 hertiens correspondants.

Bibliographie

- [1] BORDÉ (C.), HENRY (A.) et HENRY (L.), *C. R. Acad. Sci. Paris*, 1966, **262B**, 1389.
 - [2] BORDÉ (C.) et HENRY (L.). International Quantum Electronics Conference (Journal of Quantum Electronics, 1968, 874-880).
 - [3] GARING (J. S.), NIELSEN (H. H.) et RAO (K. N.), *J. Molecular Spectr.* 1959, **3**, 496-527.
-