

## TD 1: Profils de raies et spectroscopie

### 1 Spectroscopie

L'élément essentiel d'un spectromètre est un réseau d'amplitude qui permet de séparer spatialement les différentes composantes spectrales de la lumière incidente. Celui-ci est utilisé dans un montage dit de Fraunhofer, c'est-à-dire entre deux lentilles convergentes, la première (de distance focale  $f'_1$ ) faisant l'image à l'infini d'une fente source, la seconde (de distance focale  $f'_2$ ) ramenant l'infini sur un écran à distance finie. On considère un réseau ayant 5000 traits/cm, de longueur  $L = 2,5$  cm. Soit  $a$  la distance entre deux traits (le pas du réseau).

1. L'intensité diffractée par un réseau à  $N$  traits s'écrit : <sup>1</sup>

$$I(\varphi) = I_0 \frac{\sin^2(N\varphi/2)}{\sin^2(\varphi/2)} \quad \text{avec} \quad \varphi = 2\pi \frac{a}{\lambda_0} (\sin \theta - \sin \theta_i) \quad (1)$$

où  $\theta_i$  et  $\theta$  sont les angles d'incidence et de sortie de l'onde par rapport au réseau. On définit la fonction

$$g_N(u) = \frac{\sin^2(\pi Nu)}{N^2 \sin^2(\pi u)} \quad \text{telle que} \quad I(\varphi) = N^2 I_0 g_N(\varphi/2\pi). \quad (2)$$

Tracer  $g_N(u)$ . Quelle est la largeur des pics principaux de la figure de diffraction d'une source monochromatique passant par le réseau ?

2. Donner la position angulaire des maxima d'intensité, en déduire la loi des réseaux. De combien varie l'angle  $\theta$  si la longueur d'onde change de  $d\lambda$  à ordre fixé à un ordre  $m$  donné ? En utilisant le critère de Rayleigh <sup>2</sup>, en déduire le pouvoir de résolution  $PR = \frac{\lambda}{\delta\lambda}$  du réseau, où  $\delta\lambda$  est le plus petit écart en longueur d'onde observable, en fonction de  $N$  et  $m$ . L'estimer numériquement.
3. (*Bonus*) Le pouvoir de résolution est également limité par le choix de la fente d'entrée du spectromètre : si on veut travailler à grande luminosité, on doit avoir une fente source large. Quel est le pouvoir de résolution lié à la taille de la fente d'entrée ? On calculera pour cela la distance sur l'écran entre l'image de la fente pour deux longueurs différentes.
4. Un spectromètre commercial est-il fidèle à la description faite dans l'énoncé ?

### 2 Profils de raie

La partie précédente a montré les limitations d'un spectromètre. On suppose avoir un appareil de mesure parfait, et on s'intéresse maintenant à la forme d'une raie d'émission d'une source lumineuse spectrale.

5. Il est habituel en spectroscopie de parler en fréquence  $\nu$  ou en pulsation  $\omega$  plutôt qu'en longueur d'onde d'une vibration lumineuse. Quel est l'ordre de grandeur de la fréquence de la raie verte du mercure ? De la distance fréquentielle entre les deux fréquences du doublet du sodium ?

#### 2.1 Largeur naturelle

6. On s'intéresse à une transition atomique entre deux niveaux d'énergie  $E_1$  et  $E_2$ . Justifier que si le coefficient d'émission spontanée  $A_{21}$  est non-nul, alors la raie liée à cette transition aura une largeur spectrale finie. Estimer cette largeur dans le cas d'une transition permise  $A_{21} \sim 10^8 \text{ s}^{-1}$  et une transition interdite  $A_{21} \sim 10^{-15} \text{ s}^{-1}$ .
7. Pour modéliser la forme spectrale de la raie, on part du modèle classique de l'électron élastiquement lié, dans lequel on ajoute une force de frottements qui modélise l'effet de la perte d'énergie par rayonnement. Proposer par analyse dimensionnelle une expression de  $\gamma$ , le coefficient d'amortissement dans l'expression de la force  $\vec{F} = -m_e \gamma \vec{v}$ , en admettant que  $\gamma \propto \omega^2$ . Estimer numériquement  $\gamma$ .

1. On a supposé les traits infiniment fins, sinon il faudrait multiplier cette fonction par le facteur de forme du motif, ici un sinus cardinal qui dépend de l'épaisseur des traits.

2. Le critère de Rayleigh est un critère empirique qui précise que deux taches lumineuses sont distinguables l'une de l'autre tant qu'elles se sont pas trop proches, la limite étant lorsque le maximum de l'une est superposé au minimum de l'autre.

- En présence d'une onde de pulsation  $\omega$ , déterminer la position de l'électron en fonction de  $\omega$  et des paramètres du problème. En déduire la polarisabilité du système, puis la susceptibilité électrique  $\chi$  en supposant être dans un milieu dilué de densité particulaire  $N$ .
- On rappelle que dans un milieu diélectrique, la puissance volumique moyenne cédée aux charges par un champ électrique s'écrit  $\mathcal{P} = \left\langle \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \cdot \vec{E} \right\rangle$  où le vecteur polarisation s'écrit  $\vec{P} = \varepsilon_0 \chi \vec{E}$ . En déduire que c'est la partie imaginaire de  $\chi$  qui contient l'information de l'absorption de l'onde. Ainsi, montrer que si  $\nu = \frac{\omega}{2\pi}$  est proche de la fréquence propre du système, l'absorption a la forme d'une lorentzienne :

$$\phi(\nu) = \frac{1}{\pi} \frac{\delta}{\delta^2 + (\nu - \nu_0)^2} \quad \text{avec} \quad \delta \propto \gamma. \quad (3)$$

## 2.2 Effet des collisions (Bonus)

Les collisions entre atomes provoquent des désexcitations supplémentaires, elles diminuent donc la durée de vie d'un niveau excité. La présence de collisions modifie le coefficient  $\delta$  dans le profil de raie.

- À température et pression ambiante, exprimer par un calcul microscopique le nombre moyen de collisions subies par une particule par unité de temps  $\gamma_{\text{coll}}$  en fonction de la densité particulaire. L'estimer.
- Grâce à cet ordre de grandeur, justifier que certaines transitions électroniques sont difficilement observées.

## 2.3 Effet Doppler

Nous n'avons pas encore considéré l'effet de la température. Or dans une expérience typique, la source est un gaz d'atomes à l'équilibre thermique à la température  $T$ . On regarde le spectre d'émission de la source.

- Justifier la présence d'un effet Doppler sur la fréquence observée. Quelle est la conséquence de l'effet Doppler sur la fréquence de la raie vue par l'observateur? Donner l'expression du décalage en fréquence  $\Delta\nu$  d'une onde issue d'un atome à la vitesse  $v_z$  dans la direction de l'observateur.
- En déduire la distribution spectrale vue par un observateur, en supposant que la raie est initialement monochromatique.
- Estimer l'élargissement spectral d'une raie à température ambiante par effet Doppler. Faire également le calcul à  $T = 5700$  K. Comparer la largeur obtenue à la largeur naturelle et celle obtenue par collisions.
- L'effet Doppler donne donc un profil de raie  $\phi_{\text{Dop}}(\nu)$  différent de celui lorentzien de la largeur naturelle ou des collisions  $\phi_{\text{nat}}(\nu)$ . Proposer une expression du profil  $\phi(\nu)$  prenant en compte les deux effets.

## 3 Dépasser l'effet Doppler

L'effet Doppler est souvent l'effet dominant qui détermine la forme et la largeur d'une raie, même à basse température puisque les systèmes sont fréquemment très dilués. En laboratoire, plusieurs techniques ont été développées pour s'affranchir de ce phénomène, cette partie a pour objectif d'en introduire quelques-unes.

### Refroidissement laser des atomes (PN 1997)

- Afin de limiter l'effet Doppler, on cherche à refroidir les atomes du gaz d'intérêt, ce qui est possible jusqu'à une température de l'ordre de quelques kelvins à l'hélium liquide. Il est possible à ce stade de refroidir le gaz grâce à l'effet Doppler : supposons que le gaz est constitué d'atomes avec une fréquence de transition à  $\nu_0$ . Expliquer en quoi envoyer deux faisceaux laser contrapropageants sur le gaz à la fréquence  $\nu \leq \nu_0$  permettre de refroidir le gaz d'atomes dans la direction de propagation des faisceaux lasers.
- Lors du processus décrit précédemment, quelle est la variation de quantité de mouvement subie par la particule lorsque celle-ci absorbe un photon ?

### Spectroscopie en absorption saturée

Une possibilité pour retrouver simplement la fréquence  $\nu_0$  d'une transition atomique d'un nuage de gaz en se débarrassant de l'effet Doppler est d'utiliser un mécanisme de *pompe-sonde*. On envoie selon  $\vec{e}_x$  un laser sonde à  $\nu$  de faible intensité dont on mesure l'absorption après le passage au travers du nuage de gaz. On envoie de plus un laser pompe de grande intensité à la même fréquence, selon  $-\vec{e}_x$ . Ce laser est capable de saturer une transition atomique s'il est réglé à la bonne fréquence.

- Étudier les cas  $\nu < \nu_0$ ,  $\nu > \nu_0$  et  $\nu = \nu_0$ . Justifier la courbe de la Fig. 1, résultat expérimental d'une mesure d'absorption saturée sur une transition du rubidium.

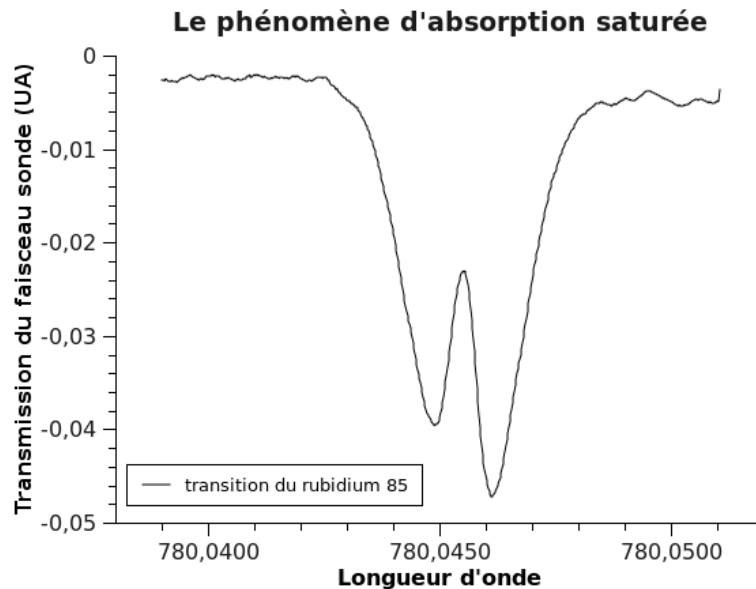


FIGURE 1 – Transmission du laser sonde à travers le nuage de gaz en fonction de sa longueur d’onde.

### Absorption à deux photons

Une autre possibilité (plus technique) pour éliminer l’effet Doppler est d’utiliser une absorption **à deux photons**. Voici des extraits d’un article [1] qui a prouvé expérimentalement que cette méthode permettait d’améliorer drastiquement la résolution spectrale.

Lire l’article, et répondre en groupes aux questions ci-dessous :

1. Expliquer théoriquement le principe de la méthode, l’avantage d’une absorption à deux photons pour dépasser l’effet Doppler, ainsi que les limitations.
2. Vue la structure de niveaux, quelle serait la séparation en pulsation  $\omega$  de l’onde incidente attendue entre les deux transitions ?
3. Faire un schéma rapide du montage. Expliquer comment les auteurs obtiennent des ondes polarisées  $\pi$  (rectilignement),  $\sigma^\pm$  (circulairement gauche ou droite). Sans entrer dans le détail, expliquer l’intérêt d’une telle transformation.

### Références

- [1] Biraben et al., “Experimental Evidence of Two-Photon Transition without Doppler Broadening” *Phys. Rev. Lett.* **32**, 643 (1974).

## Experimental Evidence of Two-Photon Transition without Doppler Broadening

F. Biraben, B. Cagnac, and G. Grynberg

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'École Normale Supérieure, associé au Centre National de la Recherche Scientifique, Université Paris VI, 75231 Paris Cedex 05, France

(Received 28 January 1974)

Experiments on the 3S-5S two-photon transition in sodium give evidence that Doppler broadening is eliminated if the atom absorbs two photons propagating in opposite directions. The proof is given by the comparison of the two-photon absorption line shape in traveling and standing waves.

We first summarize the principle of the method.<sup>2</sup> Consider an atom moving at a velocity  $\vec{v}$ , in a standing wave of circular frequency  $\omega$ . In its rest frame, this atom interacts with two oppositely traveling waves of frequencies  $\omega(1 - v_x/c)$  and  $\omega(1 + v_x/c)$ , respectively. We suppose that the atom can reach an excited state  $e$  (energy  $\hbar\omega_e$ ) by absorbing two photons in the ground state  $g$  (energy  $\hbar\omega_g$ ). At resonance, the following condition is fulfilled:

$$\hbar\omega_e - \hbar\omega_g = \hbar\omega(1 - v_x/c) + \hbar\omega(1 + v_x/c) = 2\hbar\omega. \quad (1)$$

The terms depending on the velocity of the atom disappear, indicating that, at resonance, all the atoms, irrespective of their velocities, can absorb two photons. Theoretically the width of this resonance is of the same order of magnitude as the natural linewidth. If  $\omega$  does not fulfill the resonant condition (1), but is still close to it, the atoms cannot absorb two photons propagating in opposite directions, although some atoms of definite velocity  $v_x$  can absorb two photons propagating in the same direction.

The experimental results obtained under the above mentioned conditions are presented in the three diagrams of Fig. 2. Figure 2(a) shows a preliminary experiment: The atoms interact with only one traveling wave (*without mirror*). In this case, the theoretical curve is the sum of the Doppler lines corresponding to the two hyperfine transitions  $F=2 \rightarrow F'=2$  and  $F=1 \rightarrow F'=1$  [these Doppler lines are the dashed lines in Fig. 2(a), the sum of these Doppler lines is a solid line]. The experimental points are spread over a range of 2000 MHz with a similar intensity. The intensity of the maximum is much smaller than the ones of Figs. 2(b) and 2(c), which show resonances in the absence of the Doppler effect [the vertical scale of Fig. 2(a) is expanded by a factor of 10].

Figure 2(b) shows the experimental points obtained when the laser beam is *reflected back in the cell*. The laser beam is *linearly polarized*. In this case the atoms can either absorb two photons of the same wave, or two photons propagating in opposite directions. The Doppler line due to absorption of photons of the same wave is printed on Fig. 2(b), the intensity of this line is much smaller than that of the two narrow peaks which correspond to the two hyperfine transitions without Doppler broadening. The present uncertainty in the laser frequency prevents us from giving any significance to the experimental widths of the peaks, or assigning a precise value to the hyperfine structure of the 5S level.

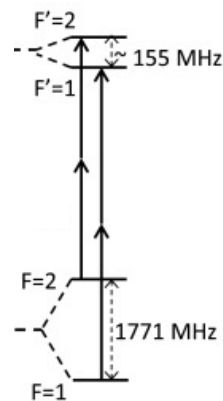


Figure 2(c) shows the experimental points when *one traveling wave is polarized  $\sigma^+$  and the other is polarized  $\sigma^-$* . This is accomplished by placing one quarter-wave plate before the sodium cell, and another one between the cell and the mirror. In this case, the atom must absorb one photon of each wave since the selection rule  $\Delta m_F = 0$  forbids the absorption of two  $\sigma^+$  or two  $\sigma^-$  photons.<sup>1</sup> One sees that the experimental signal is equal to zero outside the frequency range of the two peaks. The Doppler background disappears by using this polarization configuration. We have performed another test by removing the mirror and observing that the signal disappears since the atom cannot absorb two photons of a  $\sigma^+$  traveling wave.

