



HAL
open science

Spectrométrie de haute précision dans l'infrarouge par transformation de fourier et par diode laser asservie en fréquence .

Christophe Nicolas

► **To cite this version:**

Christophe Nicolas. Spectrométrie de haute précision dans l'infrarouge par transformation de fourier et par diode laser asservie en fréquence .. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1985. Français. NNT: . pastel-00716502

HAL Id: pastel-00716502

<https://pastel.hal.science/pastel-00716502>

Submitted on 10 Jul 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

T H E S E

présentée
pour obtenir

le TITRE de DOCTEUR EN SCIENCES

de l'Université PARIS-SUD

Spécialité : OPTIQUE

par

Christophe NICOLAS

SUJET : SPECTROMETRIE DE HAUTE PRECISION DANS L'INFRAROUGE PAR
TRANSFORMATION DE FOURIER ET PAR DIODE LASER ASSERVIE
EN FREQUENCE.

soutenue le 16 juillet 1985 devant la Commission d'examen

MM. A. MARECHAL Président
P. BOUCHAREINE
P. CONNES
L. HENRY
A. VALENTIN

SOMMAIRE

INTRODUCTION		1
<hr/>		
CHAPITRE I	PRESENTATION DES DIODES LASER	5
I.1) EFFET LASER DANS LES SEMI-CONDUCTEURS		6
I.1.a) Inversion de population		6
I.1.b) Transitions radiatives		7
I.1.c) Amplification		9
I.2) LES DIODES A SELS DE PLOMB		12
I.2.a) Composition du cristal		12
I.2.b) Température de fonctionnement		13
I.2.c) Courant de polarisation		14
I.2.d) Caractéristiques spatiales de l'émission		15
I.3) PROBLEMES RENCONTRES EN SPECTROSCOPIE PAR DIODE LASER		16
<hr/>		
CHAPITRE II	CALIBRATION DES SPECTRES PAR UN INTERFEROMETRE A CHAMP COMPENSE	20
II.1) INTRODUCTION		21

II.2) CALIBRATION DE SPECTRES PAR UN INTERFEROMETRE DE MICHELSON	22
II.2) INTERFEROMETRE A CHAMP COMPENSE	24

CHAPITRE III	DESCRIPTION DU SPECTROMETRE A TRANSFORMATION DE FOURIER	29
--------------	--	----

III.1) INTRODUCTION - CHOIX DE LA TRANSFORMATION DE FOURIER	30
--	----

III.2) SYSTEME OPTIQUE	33
------------------------	----

III.2.a) Optique infrarouge	33
-----------------------------	----

III.2.b) Optique laser de référence	38
-------------------------------------	----

III.3) REALISATION D'UN SPECTRE PAR TRANSFORMATION DE FOURIER	39
--	----

III.3.a) Principe	39
-------------------	----

III.3.b) Obtention de l'interférogramme	40
---	----

III.3.c) Traitement numérique	44
-------------------------------	----

CHAPITRE IV	MESURE ET ASSERVISSEMENT DE LA DIF- FERENCE DE MARCHE - EXEMPLE DE SPEC- TRE PAR TRANSFORMATION DE FOURIER	46
-------------	--	----

IV.1) MOUVEMENT DE L'OEIL DE CHAT	47
IV.2) MESURE DE LA DIFFERENCE DE MARCHE	50
IV.3) OBTENTION DU SIGNAL D'ERREUR -ASSERVISSEMENT	55
IV.4) COMMANDE DE DEPLACEMENT DE L'OEIL DE CHAT	57
IV.5) REALISATION DES SPECTRES	59
IV.6) PROJET DE MISE SOUS VIDE	62

CHAPITRE V

STABILISATION ET PILOTAGE EN NOMBRE D'ONDES DES DIODES LASER
--

65

V.1) MONTAGE OPTIQUE	66
V.2) STABILISATION EN NOMBRE D'ONDES	69
V.2.a) Principe	69
V.2.b) Conditions de fonctionnement	72
V.3) PILOTAGE EN NOMBRE D'ONDES DE L'EMISSIION DES DIODES	74
V.3.a) Principe	74
V.3.b) Conditions de fonctionnement	76

CHAPITRE VI	REALISATION DE SPECTRES PAR DIODE LASER EN MODE ASSERVI	80
VI.1) CHOIX DE LA MOLECULE ETUDIEE		81
VI.2) CHOIX DES CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT		82
VI.3) SPECTRE D'EMISSION PAR TRANSFORMATION DE FOURIER		84
VI.4) ASSERVISSEMENT DES DIODES ET SPECTRE D'ABSOR- PTION		86
VI.4.a) Balayage du courant de polarisa- tion		87
VI.4.b) Balayage en température		88
<hr/>		
CHAPITRE VII	CHAINE D'ACQUISITION ET DE TRAITEMENT DES DONNEES	91
VII.1) INTRODUCTION - OBJECTIFS		92
VII.2) RAPPELS SUR LES RAIES D'ABSORPTION		93
VII.2.a) Lois d'absorption		93
VII.2.b) Elargissement des raies		94
VII.2.c) Largeur équivalente - Mesure d'intensité		97

VII.3) LA CHAINE D'ACQUISITION ET DE TRAITEMENT DE	
TRAITEMENT DES DONNEES	100
VII.3.a) Acquisition	100
VII.3.b) Organigramme général du programme de traitement	101
VII.3.c) Travail sur les valeurs enregistrées	103
VII.3.d) Mesures sur la raie	107

CHAPITRE VIII	PRESENTATION DES RESULTATS OBTENUS--CONCLUSIONS	110
VIII.1) CHOIX DES RAIES ETUDIEES		111
VIII.2) MESURES D'INTENSITE		111
VIII.3) MESURES DE PARAMETRES D'ELARGISSEMENT DE N ₂ O PAR L'AZOTE		114
VIII.4) ANALYSE DES MESURES ET CONCLUSIONS		116

REFERENCES		121
------------	--	-----

ANNEXE 1	MONOCHROMATEUR A DISPERSION NULLE FILTRAGE DES MODES DE LA DIODE LASER	123
A1.1) DESCRIPTION OPTIQUE		124

ANNEXE 2

SUR LES BANDES ν_3 ET $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ DE LA MOLECULE N_2O
--

131

A2.1) NIVEAUX VIBRATIONNELS

132

A2.2) REGLES DE SELECTION

133

A2.3) BANDE ν_3 DE N_2O

134

A2.4) BANDE $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$

135

A2.5) INTENSITE DE LA BANDE $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$

136

Je suis heureux de pouvoir exprimer ma respectueuse gratitude à Monsieur le Professeur A. Maréchal, Membre de l'Institut, pour l'honneur qu'il a bien voulu me faire en s'intéressant à ce travail et en acceptant la présidence du jury de cette thèse.

Je prie Monsieur P. Connes, Directeur de Recherche au CNRS, et Monsieur P. Bouchareine, Professeur des Universités, d'accepter l'expression de ma très vive reconnaissance pour l'intérêt qu'ils ont bien voulu porter à mes efforts et pour avoir accepté de faire partie de ce jury.

Mes remerciements vont aussi à Monsieur Luc, Chargé de Recherche au CNRS, qui a bien voulu relire ce mémoire et en faire une analyse.

Monsieur L. Henry, Directeur de Recherche au CNRS, Directeur du Laboratoire de Spectrométrie Moléculaire, a assumé la direction de cette thèse. Ses conseils et son expérience m'ont été essentiels tout au long de ce travail, qu'il trouve ici l'expression de ma sincère reconnaissance.

Je remercie vivement Monsieur A. Valentin, Chargé de recherche au CNRS, pour m'avoir tant appris sur le plan instrumental et pour la gentillesse qu'il m'a constamment témoignée.

Que Monsieur A. W. Mantz, de Spectra-Physics Laser Analytical Division, trouve ici l'expression de ma reconnaissance pour le support technologique et pour les excellents conseils qu'il nous a apportés. Celle-ci s'adresse

également à M.Besson, Directeur de Recherche au CNRS, qui a bien voulu me faire part de ses remarques sur la première partie de ce mémoire.

Je remercie tous les chercheurs du laboratoire pour leur soutien fructueux et amical, et en particulier Mesdames A.Henry et M.Margottin-Maclou ainsi que Messieurs J.Chazelas et J.L.Teffo, pour leurs nombreux conseils en spectroscopie moléculaire.

Que les techniciens du laboratoire trouvent ici l'expression de ma reconnaissance pour leur contribution au développement des expériences en électronique, mécanique, optique et soufflage de verre.

Monsieur L.Bernard pour la conception instrumentale et Madame N.Dagens pour mise en forme de ce mémoire, m'ont fait largement profiter de leur compétence. Je leur en suis vivement reconnaissant.

Enfin je remercie Madame O.Fellmann qui s'est chargée avec compétence de la frappe et de l'organisation du manuscrit sur une machine à traitement de texte.

INTRODUCTION

Les diodes laser accordables fournissent dans la partie infrarouge du spectre, un rayonnement de très bonne qualité quant à la finesse spectrale et au rapport du signal au bruit. Elles ne possèdent malheureusement pas de moyen efficace, de calibration spectrale interne.

Il serait pourtant intéressant de disposer avec ces instruments, d'une précision sur la détermination des nombres d'ondes qui égale celle de la spectrométrie par transformation de Fourier, lorsque celle-ci perd de son intérêt en raison du faible domaine spectral étudié, et surtout lorsqu'il est nécessaire de modifier fréquemment les conditions expérimentales d'un spectre (pression, température, titre d'un mélange gazeux).

Nous décrivons une méthode de travail qui permet, en contrôlant le nombre d'ondes de l'émission de diodes laser accordables, d'atteindre une grande précision dans la mesure de l'intensité et la largeur des raies d'absorption.

Ce nombre d'ondes (ν) est asservi aux interférences produites par le rayonnement lui-même, à travers un interféromètre de Michelson à grande différence de marche (δ). Celle-ci est elle-même stabilisée sur le système d'interférence d'un laser hélium-néon asservi en fréquence sur son creux central d'accord.

Afin que l'ordre d'interférence:

$$k = \delta \cdot \sigma$$

reste constant lorsque δ est stable, les fluctuations de σ sont corrigées par l'asservissement de la diode.

L'interféromètre ayant été construit pour la spectrométrie par transformation de Fourier, la variation de sa différence de marche peut être commandée en mode pas à pas asservi. Ainsi, lorsque δ varie, σ évolue en conséquence afin que k reste constant. Les performances de l'interféromètre, quant à la stabilité de sa différence de marche, nous permettent ainsi d'enregistrer des spectres d'absorption échantillonnés du rayonnement émis par la diode, chaque échantillon correspondant à un nombre d'ondes stabilisé du rayonnement.

Le premier chapitre de ce mémoire de thèse est consacré au rappel du principe de l'effet laser dans les semi-conducteurs, ainsi que des problèmes typiques posés par ces instruments en spectroscopie infrarouge.

Nous relatons ensuite, au chapitre II, une première tentative de calibration des spectres par un interféromètre de Michelson à différence de marche fixe de l'ordre de 1 mètre, et à champ compensé. A l'issue de cette expérience, nous avons décidé d'associer la diode au grand interféromètre du laboratoire déjà opérationnel en spectrométrie par transformation de Fourier.

Nous décrivons celui-ci dans son fonctionnement en temps que spectromètre, au chapitre III, tandis que le chapitre IV décrit le système de mesure, stabilisation et commande de variation de la différence de marche.

L'interféromètre étant utilisé comme instrument de calibration, nous montrons ensuite au chapitre V, comment le même système a permis d'utiliser la stabilité spectrale du laser He-Ne de référence, pour limiter la variation relative du nombre d'ondes des diodes, et enregistrer des spectres d'absorption échantillonnés.

Le chapitre VI, présente l'aspect pratique de notre méthode, pour ce qui est de l'enregistrement d'un spectre.

Puis vient, au chapitre VII, la description de la chaîne de traitement des données que nous avons développée, sous forme de programmes informatiques fonctionnant sur un mini-ordinateur (IBM-PC).

Dans le chapitre VIII, nous présentons ensuite quelques résultats de mesures, effectuées sur des raies appartenant aux bandes ν_3 et $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ de la molécule N_2O . Nous en tirons quelques hypothèses sur les caractéristiques réelles de l'émission des diodes, pour ce qui est des fluctuations rapides de leur nombre d'ondes.

En conclusion, on montre qu'il est possible avec les diodes laser asservies, de mesurer des écarts spectraux compris entre 0,001 et 1 cm^{-1} entre deux raies, avec une

erreur de 10^{-5} cm^{-1} vers 2000 cm^{-1} , puis d'étudier les raies dans des conditions telles que l'élargissement collisionnel soit quantitativement comparable à l'élargissement par effet Doppler, ce qui signifie que l'on peut mesurer des paramètres d'élargissement collisionnels sur des spectres contenant un grand nombre de raies.

Quant aux mesures d'intensités absolues, le gain de cette méthode réside surtout dans la résolution, la rapidité de travail et la reproductibilité des mesures.

CHAPITRE I

PRESENTATION DES DIODES LASER

I.1) EFFET LASER DANS LES SEMI-CONDUCTEURS

Rappelons que l'effet laser dans les semi-conducteurs [1] est basé sur le principe d'une recombinaison radiative électron-trou, un électron de la bande de conduction passant dans la bande de valence en franchissant une bande d'énergie interdite, de largeur E_g , cette transition étant accompagnée de l'émission d'un photon d'énergie:

$$h \nu = E_g$$

En présence d'un rayonnement électromagnétique, il peut y avoir émission stimulée de ces photons à la fréquence ν et effet laser lorsque la zone de recombinaison se trouve dans une cavité résonante ⁿ réalisée généralement par le clivage parallèle de deux faces du cristal semi-conducteur.

I.1.a) Inversion de population

L'occupation en porteurs de charge des bandes d'énergie permises se caractérise par la position des niveaux de Fermi sur le diagramme d'énergie du semi-conducteur, par exemple en l'absence de dopage, et si les masses effectives des électrons sont égales dans les bandes d'énergie permises, le niveau de Fermi d'un semi-conducteur se situe à mi-distance des bandes de valence et de conduction dans la bande interdite.

Si nous considérons maintenant une jonction entre

deux semi-conducteurs dopés et dégénérés (Fig. I.1), l'un de type N, l'autre de type P, à l'équilibre thermodynamique, le niveau de Fermi est commun à toutes les parties de la jonction, l'occupation électronique est partielle pour la bande de conduction de la partie dopée N et incomplète pour la bande de valence de la partie P. Une polarisation par la tension U déforme les bandes sur le diagramme d'énergie (Fig. I.2) et le courant d'injection crée une inversion de population au voisinage de la jonction par injection d'électrons au-delà de la bande interdite. L'occupation des bandes d'énergie permise est alors caractérisée par les quasi-niveaux de Fermi F_c pour la bande de conduction, et F_v pour la bande de valence, tel que :

$$F_c - F_v = e \cdot U ,$$

e étant la charge de l'électron.

Le concept de "quasi niveau de Fermi" pour une bande d'énergie est valable à condition que les électrons de cette bande échangent leur énergie avec un thermostat en un temps court par rapport au temps nécessaire au retour à l'équilibre par transition bande à bande.

I.1.b) Transitions radiatives

L'inversion de population permet alors des transitions radiatives directes ou indirectes par recombinaison électron-trou suivant le schéma :

Transition directe :



Transition indirecte :



suiyant qu'il y a, ou non, conservation du vecteur d'onde lors de la transition.

Soient k_j et k_i les vecteurs d'onde initial et final de la transition, l'état d'énergie électronique dans un solide étant représenté par une onde de Bloch définie sur tout le cristal, la probabilité d'occupation d'un état d'énergie $E_c(k_j)$ dans la bande de conduction est donnée par la fonction de Fermi-Dirac :

$$f_c = \frac{1}{1 + \exp[(E_c(k_j) - F_c) / k_0 \cdot T]} \quad (1)$$

La même formule donne f_v pour l'état $E_v(k_i)$ de la bande de valence:

$$f_v = \frac{1}{1 + \exp[(E_v(k_i) - F_v) / k_0 \cdot T]} \quad (2)$$

k_0 étant la constante de Boltzmann

I.1.c) Amplification

Dans le cas d'une transition radiative directe, et si l'on suppose la présence d'un champ électromagnétique de densité $P(\nu)$ en photons de fréquence ν , correspondant à

$$E_c(k_j) - E_v(k_i) = h \cdot \nu,$$

le nombre de photons absorbés par unité de temps est:

$$N_a = A \cdot W_v^c \cdot f_v(k_i) \cdot [1 - f_c(k_j)] \cdot P(\nu)$$

W_v^c étant la probabilité par unité de temps d'une transition radiative directe. Le nombre de photons émis par unité de temps, par émission stimulée est:

$$N_e = A \cdot W_c^v \cdot f_c(k_j) \cdot [1 - f_v(k_i)] \cdot P(\nu)$$

Le coefficient de proportionnalité A comprend les densités d'état des bandes de conduction et de valence.

En faisant l'hypothèse d'Einstein $W_v^c = W_c^v$, la condition d'amplification:

$$N_e > N_a$$

devient :

$$f_c(k_j) \cdot [1 - f_v(k_i)] > f_v(k_i) \cdot [1 - f_c(k_j)]$$

puis, en prenant les expressions (1) et (2) donnant f_c et f_v on trouve :

$$F_c - F_v > E_c(k_j) - E_v(k_i)$$

Comme on a :

$$E_c(k_j) - E_v(k_i) = h \cdot \nu$$

La condition d'amplification devient :

$$F_c - F_v > h \cdot \nu \quad (3)$$

ou encore

$$e \cdot U > E_g$$

La polarisation a donc pour effet, de permettre à des électrons qui auront acquis l'énergie suffisante de compenser dans la bande de conduction la perte des électrons qui auront participé à la transition radiative.

On peut montrer que la relation (3) est généralisable aux cas de transitions indirectes et de transitions faisant intervenir un niveau d'énergie dû à une impureté du cristal, l'effet laser par transition radiative indirecte étant beaucoup plus improbable que dans le cas d'une transition directe, ceci en raison de la durée de vie relativement longue des électrons dans ce cas, ce qui laisse le temps à des phénomènes non radiatifs de se produire.

Outre la condition (3) d'amplification il faut que le gain soit aussi supérieur aux pertes dans la cavité occasionnées par différents effets tels que la présence

d'impuretés absorbantes, les vibrations du réseau, la diffraction, la réflexion diffuse. Le cristal suffira pour réaliser la cavité résonante en le clivant suivant ses faces perpendiculaires aux plans des jonctions.

Pour obtenir un gain maximal et pour n'utiliser qu'un courant de polarisation faible au seuil de l'effet laser, il sera nécessaire d'avoir un bon confinement des porteurs de charges et des photons, dans une région la plus petite possible au niveau de la jonction. On réalise à cet effet des hétérojonctions, en utilisant des semi-conducteurs de nature différente. Sur la figure 1.3 est représentée une double hétérojonction utilisant un alliage ternaire du type $A_{1-x}B_xC_x$ et le cristal AC.

On voit alors que le phénomène de barrière de potentiel au voisinage des jonctions entraîne un confinement des porteurs de charges dans cette région, propice aux transitions radiatives : les électrons sont réfléchis par l'hétérojonction P-N et les trous par l'hétérojonction N-N.

De même si les indices de réfraction des matériaux extrêmes du "sandwich" sont assez différents et plus faibles que l'indice du matériau intermédiaire, on aura confinement du rayonnement électromagnétique dans cette région.

I.2) LES DIODES A SELS DE PLOMB [2]

L'intérêt des diodes laser à sels de plomb en spectroscopie est lié à la faible largeur spectrale de la radiation émise (inférieure à 10^{-4} cm^{-1}), et au grand domaine spectral qu'elles peuvent explorer, en particulier entre 3 et 30 μm , où se trouvent les bandes d'absorption de la plupart des molécules polyatomiques. La famille des semi-conducteurs à sels de plomb comprend PbTe , PbSe , PbS , cristaux cubiques de type NaCl , ainsi que des alliages entre eux-mêmes ou avec SnTe (cubique), SnSe (orthorhombique) etc.....

Nous allons rappeler quels sont les paramètres qui permettent de choisir le nombre d'ondes d'émission d'une diode, et de faire varier celui-ci : il s'agit de la composition du cristal, de la température de fonctionnement et du courant de polarisation pour le type de diodes que nous avons utilisé. Notons qu'il est aussi possible d'utiliser la pression hydrostatique [3].

I.2.a) Composition du cristal

La figure I.4 [4] représente les variations des trois paramètres importants d'un alliage que sont l'écart d'énergie (E_g) entre les bandes permises, l'indice de réfraction (n) et la constante de maille (a), en fonction du paramètre (x) de composition.

On remarque par exemple que le composé $\text{PbTe}_{1-x}\text{S}_x$ est très fragile en raison de la grande différence entre les paramètres a de PbTe et PbS , que le composé $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ n'existe que pour $x < 0,4$, et qu'il y a un phénomène d'inversion de bande pour certaines compositions de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ et $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$.

Le choix de la fraction molaire x détermine la région spectrale d'émission de la diode par une variation linéaire du nombre d'ondes avec x . Sur la figure I.5, fournie par le constructeur Laser Analytics, sont résumés les domaines spectraux et flux émis typiques des principales diodes laser à sels de Plomb.

I.2.b) Température de fonctionnement

Une fois la composition du cristal choisie, le réglage de la température de fonctionnement de la diode permet de sélectionner le nombre d'ondes émis. On est amené à refroidir le cristal pour avoir une émission lumineuse dans l'infrarouge et pour réduire l'ionisation par agitation thermique. Le fonctionnement en mode continu de diodes réalisées par simple diffusion n'est possible qu'à moins de 30 K tandis que pour une structure en bande (striped), on peut utiliser les diodes jusqu'à 80 K, ce qui permet d'utiliser la même diode dans un domaine spectral nettement plus grand (environ une centaine de cm^{-1}).

Diverses expressions analytiques furent proposées

pour exprimer l'énergie E_g en fonction de la température, et du paramètre de composition x , ceci pour divers procédés de fabrication [4], précisons seulement que E_g (donc le nombre d'ondes d'émission) augmente avec T .

1.2.c) Courant de polarisation

L'accord fin en nombre d'ondes émis de la diode se fait par action sur son courant de polarisation, après obtention de l'effet laser au-delà du courant de seuil. En dessous de cette valeur, il peut y avoir émission spontanée de lumière par transition radiative, mais ce rayonnement est incohérent et sera émis de manière isotrope dans tout le cristal et son flux est très faible. Par contre, une fois l'inversion de population réalisée, pour une valeur seuil I_s du courant de polarisation, l'effet laser sera possible. La densité de courant de seuil augmente rapidement avec la température de fonctionnement, on observe couramment un ordre de grandeur entre les valeurs de I_s à 10 et 70 K, soit de 0,1 à 1 A.

Au seuil de l'effet laser, toute l'énergie lumineuse se concentre dans un mode unique ce qui produit une raie d'émission dont la largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 10^{-6} cm^{-1} [5]. Lorsque le courant de polarisation augmente, les modes de la cavité résonante s'inscrivent dans la courbe de gain du laser et on obtient une émission représentée sur la figure 1.6 : pour chaque valeur de I on a plusieurs modes

émis, chacun évoluant en intensité lorsque I varie.

L'écart spectral entre deux modes est donné par :

$$\Delta\sigma = \frac{1}{2.n.L \left(1 + \frac{\sigma}{n} \cdot \frac{dn}{d\sigma}\right)}$$

n étant l'indice de réfraction de la partie amplificatrice du laser, L la longueur de la cavité et σ le nombre d'ondes d'un mode. Pour une cavité typique de longueur L = 500 μm on a

$$\Delta\sigma \approx 2 \text{ cm}^{-1}$$

I.2.d) Caractéristiques spatiales de l'émission

La surface émettrice d'une diode étant faible (50 μm x 10 μm environ), on aura une distribution angulaire importante du faisceau émis, de l'ordre de $\pi/4$ steradians, constituée de plusieurs lobes. La distribution d'intensité dans un plan perpendiculaire à la direction moyenne d'émission a été étudiée [6] sur un faisceau collimaté et on s'aperçoit de plus que deux lobes voisins peuvent avoir des nombres d'ondes d'émission très proches mais différents. Certaines géométries de diodes permettent une émission plus homogène, elles permettent d'obtenir un filtrage spatial au niveau de la cavité elle-même. C'est le cas de la structure en bande qui réduit la taille de la partie active du laser en ayant des contacts électriques de très petite dimension.

1.3) PROBLEMES RENCONTRES EN SPECTROSCOPIE PAR DIODE LASER

Le système de refroidissement de la diode que nous avons utilisé est basé sur le principe d'une détente d'hélium gazeux. Un compresseur envoie du gaz sous pression vers le cryostat où il est détendu par un piston, l'hélium détendu est renvoyé vers le compresseur et le système fonctionne ainsi en permanence sur ce circuit fermé.

Dans le cryostat, la détente gazeuse refroidit une pièce de cuivre qui constitue le thermostat (10K); entre ce thermostat et la diode, une impédance thermique et une résistance de chauffage permettent d'ajuster la température de la diode laser à la valeur désirée. La mesure de température se fait par des senseurs au silicium et un asservissement permet de la maintenir entre 15 et 300 K avec une stabilité de 0,002 % d'après le constructeur (Cryophysics).

Les problèmes rencontrés par les utilisateurs de ces diodes laser en spectroscopie sont des limitations dues à l'instabilité en nombre d'ondes de l'émission, à la non-linéarité entre le nombre d'ondes et le courant de polarisation lors d'un balayage, aux variations rapides de l'énergie émise, et à la forme géométrique du faisceau. Les caractéristiques de bruit en basses fréquences des diodes à sel de Plomb ont été étudiées [7] et il apparaît que le mouvement du piston de détente introduit une modulation

d'intensité de l'émission laser de 1 à 5% , à 3,5 Hz. Des mesures effectuées par des techniques hétérodynes [8], ont montré que le déplacement du piston est responsable d'une augmentation de la largeur de raie d'émission en dépit du système d'isolation mécanique développé par le fabricant.

Malgré le fait que la largeur spectrale instantanée de ce type de laser soit très faible (de l'ordre de 10^{-6} cm^{-1} [5]), on trouve dans la littérature des mesures de largeur de raies, élargies par bruit haute fréquence ou/et fluctuations de température, comprises entre $2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ et $2 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ [8], ce qui montre le grand intérêt d'une stabilisation du nombre d'ondes émis, afin de supprimer l'effet néfaste du piston.

En spectroscopie il est nécessaire de disposer d'une calibration du spectre en nombre d'ondes et dans le cas des diodes laser on utilise souvent un étalon de Fabry-Perot en germanium sur une voie optique annexe à la voie d'absorption dans une cuve. Ainsi, durant l'enregistrement du spectre, obtenu par balayage du courant de polarisation, on enregistre la transmission de l'étalon dont la modulation permet de se repérer en abscisse, c'est-à-dire en nombre d'ondes.

Il y a plusieurs inconvénients à cette méthode, tels que la sensibilité de l'indice de réfraction de l'étalon à la température, ou la variation angulaire du faisceau dans l'étalon si celui-ci est placé après un système dispersif

qui sert de filtre spectral, ou les "sauts de modes" si l'étalon est placé avant ce filtre. Il est de plus difficile de réaliser un étalon qui ait une longueur suffisante pour que les franges de calibration permettent d'exploiter toutes les informations contenues dans le profil d'émission [9]. Ainsi pour un étalon de Fabry-Perot sphérique, l'écart en nombre d'ondes entre deux pics de transmission est:

$$\Delta\sigma = \frac{1}{4ne}$$

n est l'indice de réfraction, e l'épaisseur.

Ne serait-ce que pour avoir :

$$\Delta\sigma = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

entre deux pics, lesquels sont facilement repérables, il faudrait:


$$n.e = 2,5 \text{ mètres.}$$

On pourrait aussi faire une interpolation entre deux pics de transmission en se servant de la fonction d'Airy, mais on se heurte alors au problème de la linéarité du balayage en nombre d'ondes.

Les problèmes de non-linéarité entre le nombre d'ondes émis et le courant de polarisation ont suggéré des systèmes de commande externes du courant [10], dans le but de réaliser une exploration du spectre en mode pas à pas. On comprend facilement l'intérêt de mettre en oeuvre une méthode de spectroscopie avec incrémentation digitale du nombre d'ondes émis, stabilisation de ce nombre d'ondes à chaque pas d'incrémentalation, et suppression des variations

d'intensité de l'émission.

C'est à ces trois problèmes que nous nous sommes
attaqués.

 Occupation en électrons

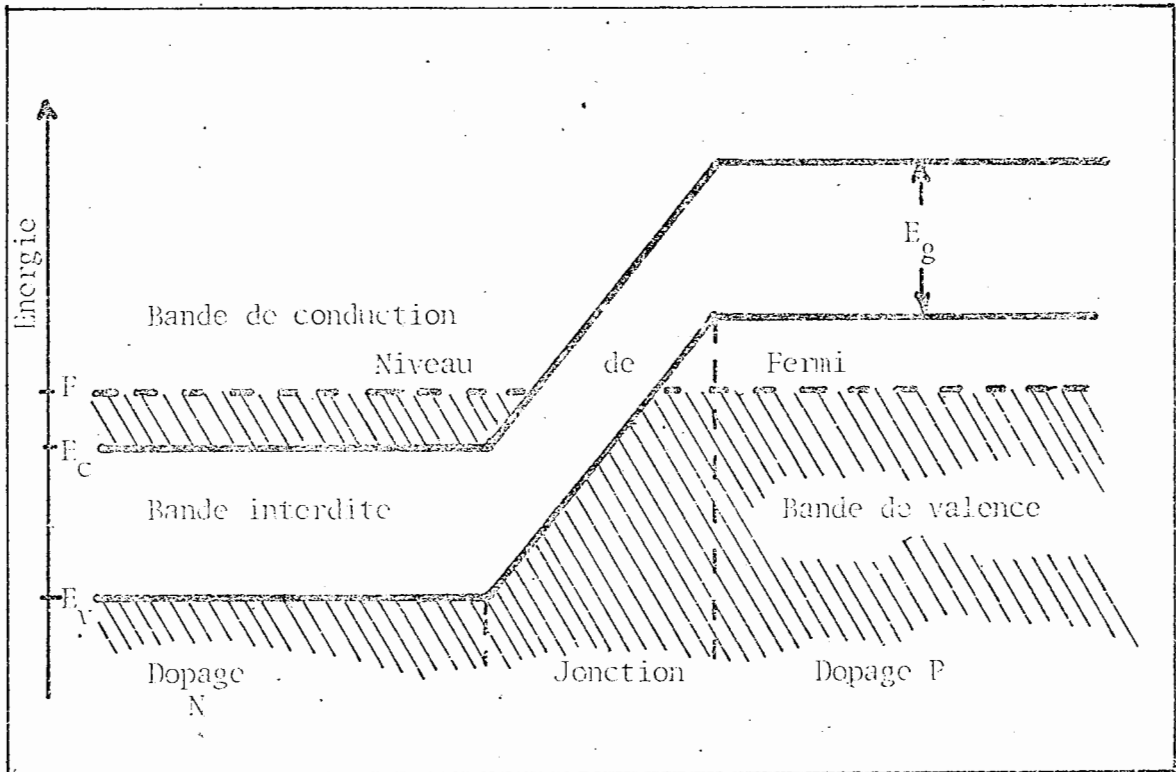


Figure I-1 : OCCUPATION DES BANDES D'ENERGIE DANS LA DIODE NON POLARISEE

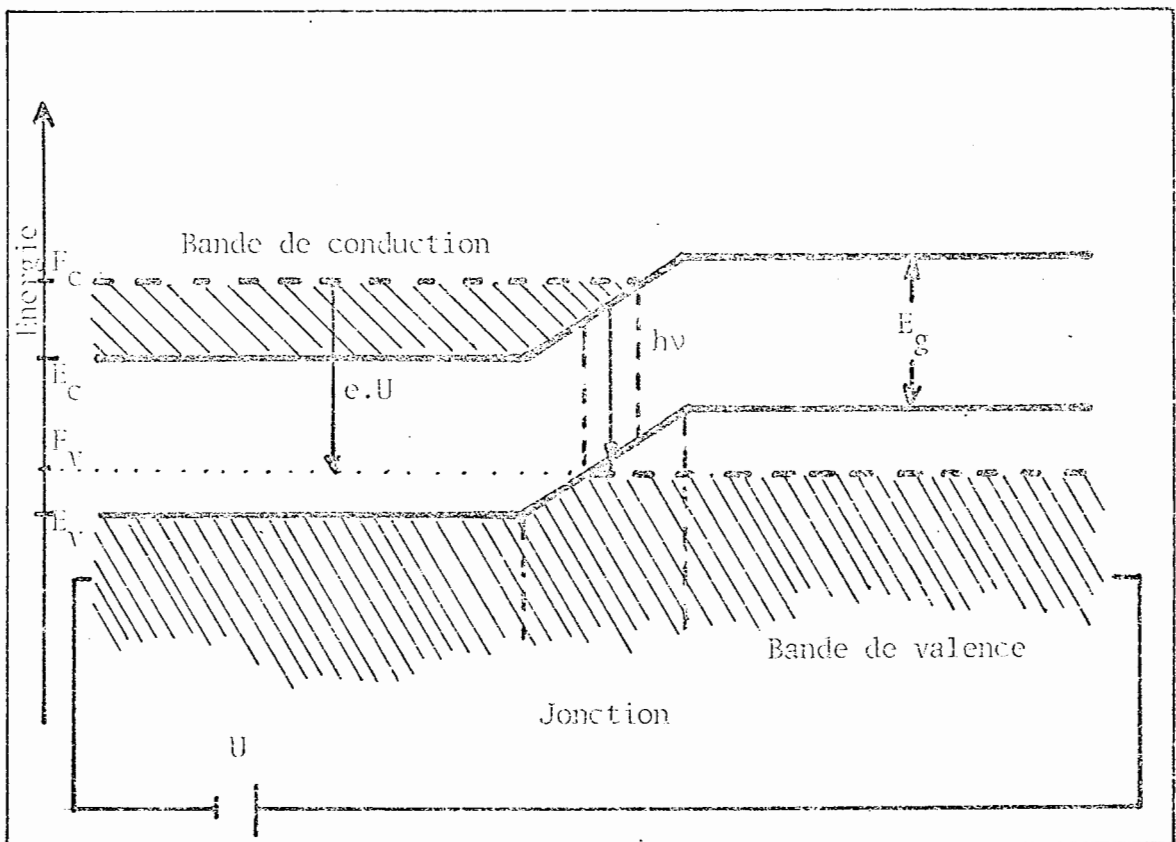


Figure I-2 : OCCUPATION DES BANDES D'ENERGIE DANS LA DIODE POLARISEE

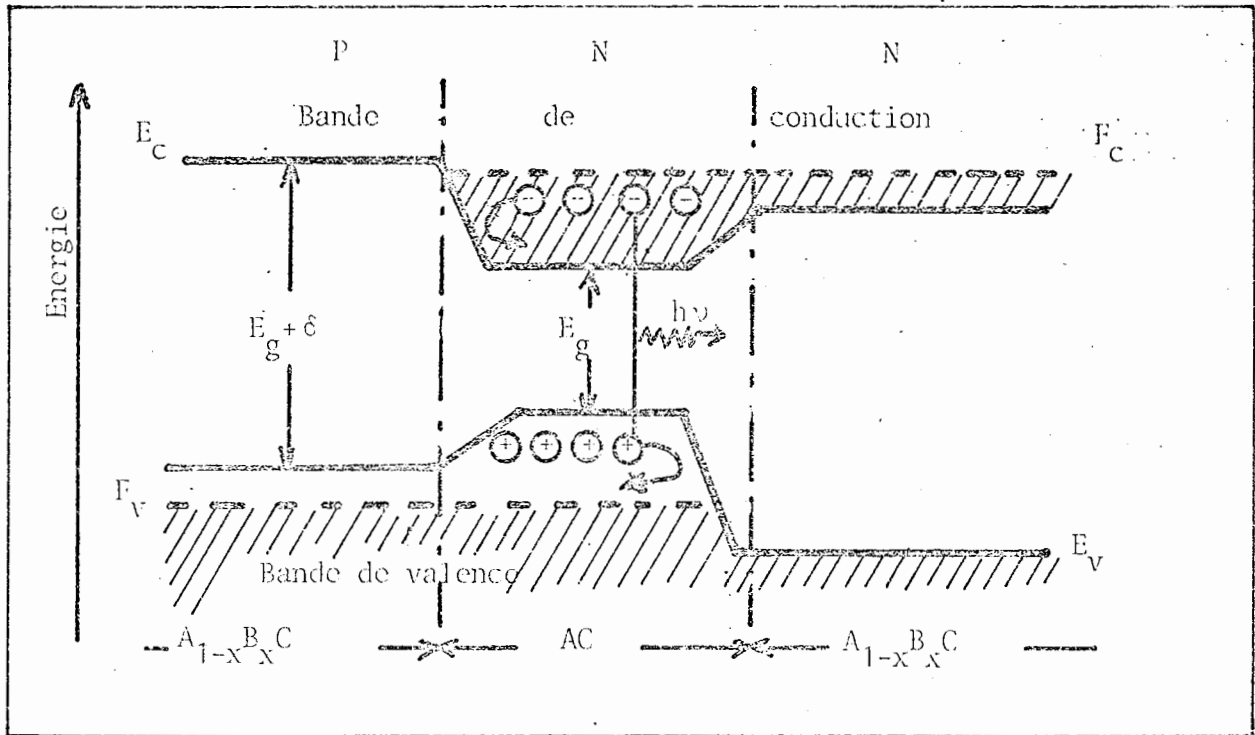


Figure 1-3 : Principe de fonctionnement d'une double hétérojonction

e^- : électron

h^+ : trou

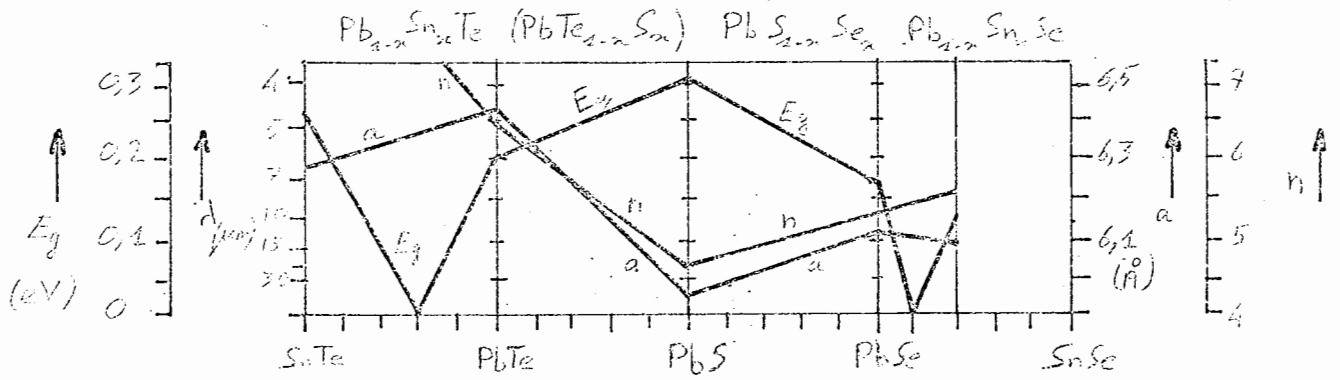


Figure I-4: Ecart d'énergie (E_g), indice de réfraction (n) et constante de maille (a) de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$, $\text{PbTe}_{1-x}\text{S}_x$, $\text{PbS}_{1-x}\text{Se}_x$, $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ à 77 K en fonction du paramètre x de composition. (Appl.Phys. 20, 189-206 (1979)).

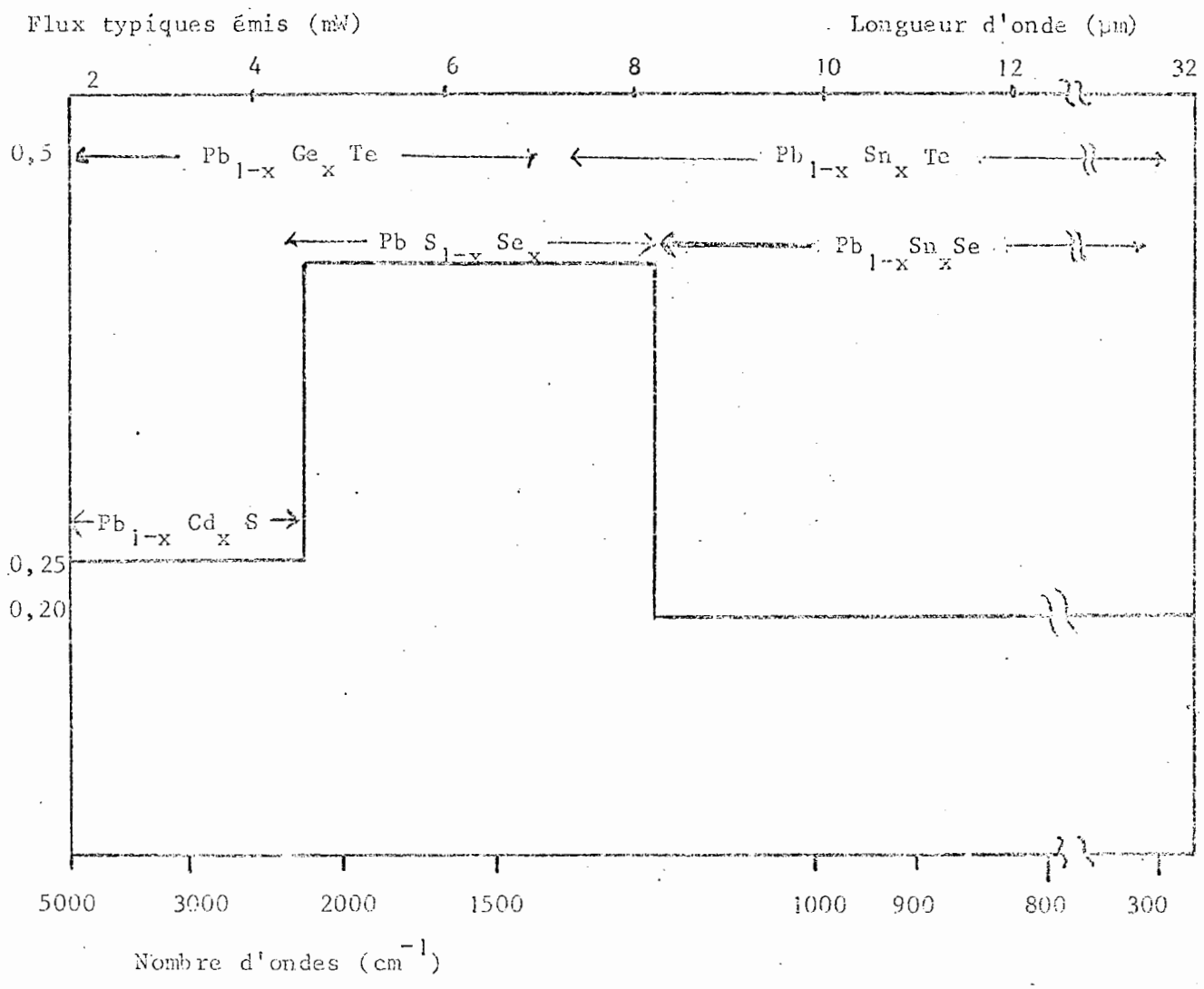


Figure I.5 : Domaines spectraux typiques d'émission en fonction de la composition du cristal.

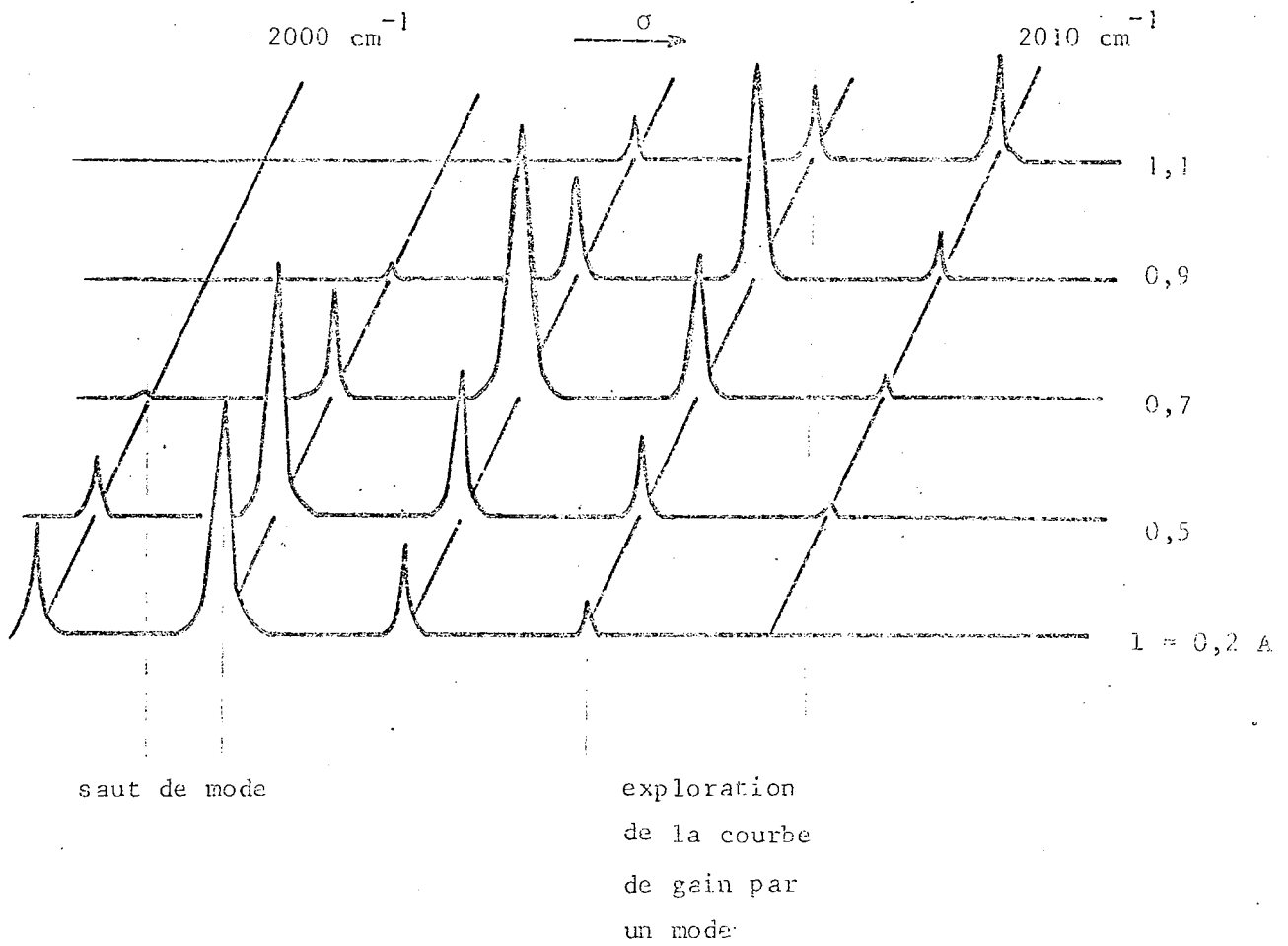


Figure I.6 : Caractéristique d'émission multimode à température constante

CHAPITRE II

CALIBRATION DE SPECTRES PAR UN
INTERFEROMETRE DE MICHELSON A
CHAMP COMPENSE

II.1) INTRODUCTION

Il nous a semblé intéressant de développer un système de calibration des spectres en nombre d'ondes, en utilisant un interféromètre de type Michelson à champ compensé [11], les systèmes réflecteurs créant la différence de marche, étant constitués de cataphotes du type "oeil de chat" [12].

Ceci afin de s'affranchir de la variation de différence de marche avec l'angle d'incidence des faisceaux, qui existe dans la plupart des systèmes de calibration interférentielle des spectres obtenus avec des diodes laser, et de ne pas être limité en champ optique. En effet, soit un interféromètre de Michelson équipé de miroirs plans et créant une différence de marche δ_0 pour le rayon paraxial, la source utilisée étant monochromatique. Pour un rayon dont l'angle d'incidence sur la séparatrice est θ , on a une différence de marche :

$$\delta = \delta_0 \cdot \cos \theta$$

Soit, si θ est faible :

$$\delta - \delta_0 = - \delta_0 \cdot \frac{\theta^2}{2}$$

et on aura une variation unitaire de l'ordre d'interférence par rapport au centre du champ pour :

$$\theta_1 = \sqrt{\frac{2\lambda}{\delta_0}}$$

Le champ de l'interféromètre, si l'on considère la séparatrice comme étant le diaphragme d'ouverture, est donc limité à $2\theta_1$, soit pour $\delta_0 = 1$ mètre et $\lambda = 4,5 \mu\text{m}$:

$$2\theta_1 = 6.10^{-3} \text{ rad.}$$

Nous verrons que la compensation du champ de l'interféromètre nous libère de cette contrainte.

II.2) CALIBRATION DE SPECTRES PAR UN INTERFEROMETRE DE MICHELSON

Dans un premier temps, examinons les possibilités d'étalonnage en nombre d'ondes d'un spectre par un interféromètre de Michelson. Si l'on néglige la largeur spectrale de la source, par conséquent en supposant qu'elle fournisse un rayonnement parfaitement monochromatique de nombre d'ondes σ et d'intensité I_0 , l'intensité transmise par l'interféromètre, en fonction de σ et de la différence de marche δ , est :

$$I(\delta, \sigma) = I_0 \cdot \cos^2(\pi \cdot \sigma \cdot \delta)$$

Sa variation est :

$$dI = \partial I / \partial \sigma \cdot d\sigma + \partial I / \partial \delta \cdot d\delta$$

$$= I_0 \cdot \pi \cdot \sin(2\pi\sigma\delta) \cdot (\delta \cdot d\sigma + \sigma \cdot d\delta)$$

Si l'on se trouve sur "le flanc d'une frange", c'est-à-dire à la valeur $I_0/2$ de l'intensité $I(\delta, \sigma)$ on a alors:

$$\cos \delta = \pm \pi/4 \quad [2\pi]$$

donc:

$$\frac{dI}{I_0} = \pm \pi \cdot (\delta \cdot d\sigma + \sigma \cdot d\delta)$$

On peut alors faire une estimation globale de la sensibilité de cette mesure. Prenons le cas particulier des conditions expérimentales qui nous intéressent.

Si on utilise un détecteur quantique InSb dont la PEB (Puissance Equivalente au Bruit) est supérieure à $10^{-10} \text{ W}/\sqrt{\text{Hz}}$, il est raisonnable d'évaluer la variation relative de flux détectable à:

$$dI/I_0 = 10^{-3}$$

pour des flux supérieurs à 10^{-6} Watts, le flux émis typiquement par les diodes laser en émission monomode pour un mode étant en général supérieur d'un ordre de grandeur, ce résultat est obtenu avec une constante de temps de l'ordre de 1 msec.

Pour $\delta = 1$ mètre et $\sigma = 2200 \text{ cm}^{-1}$, on pourra mettre en évidence une variation :

$$d\sigma \approx 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$$

à condition que l'erreur sur la différence de marche soit inférieure à

$$d\delta \approx 10 \text{ \AA}$$

pour le même temps d'intégration .

Ces chiffres donnent une idée de la précision sur la mesure de la différence de marche (à obtenir) si l'on veut s'attaquer aux problèmes des instabilités en fréquence des diodes laser.

La différence de marche ne pourra évidemment excéder la valeur :

$$\delta_{\max} = N/\sigma = \frac{\lambda}{\Delta\sigma}$$

N étant la finesse de la source,

$$N = \frac{\sigma}{\Delta\sigma}$$

donc

$$\delta_{\max} = \lambda/\Delta\sigma$$

$\Delta\sigma$ étant la largeur spectrale de la source. Par conséquent si l'on se réfère aux largeurs de raie des diodes laser citées dans la littérature (voir chapitre 1), l'observation de franges d'interférence et surtout la mise en évidence de faibles variations du nombre d'ondes sont possibles avec un interféromètre de Michelson correctement étudié ayant une différence de marche comprise entre quelques dizaines de centimètres et quelques mètres.

Nous verrons par la suite que les problèmes technologiques ne sont pas négligeables afin d'obtenir un bon système d'étalonnage en fréquence.

II.3) INTERFEROMETRE A CHAMP COMPENSE

Nous avons étudié un premier système d'étalonnage de spectres par diode laser, en construisant un prototype d'interféromètre de Michelson à champ compensé, ce qui nous a permis de mettre en évidence les problèmes à résoudre, en particulier quant à la stabilité de la différence de marche.

La figure II.1 représente le schéma de l'expérience.

Le faisceau issu de la diode laser est dirigé vers un monochromateur non dispersif (décrit en Annexe I), destiné à filtrer les modes de la cavité. Les faisceaux d'entrée et de sortie du monochromateur sont décalés verticalement (en ligne brisée le faisceau d'entrée). On obtient donc en sortie un faisceau filtré dont le nombre d'ondes varie sans que sa direction moyenne ne soit modifiée ce qui est essentiel pour éviter une dispersion chromatique dans l'interféromètre de Michelson. T_2 est l'image formée en sortie du monochromateur.

Après collimation par le miroir sphérique M_c , le faisceau est dirigé sur une lame séparatrice S qui prélève une partie du flux pour l'étalonnage et transmet le complément vers une cuve d'absorption, suivie d'un détecteur infrarouge.

L'interféromètre d'étalonnage comprend deux yeux de chat et une séparatrice. Chaque œil de chat est un cataphote constitué d'un miroir sphérique concave de forme rectangulaire au foyer duquel se trouve un petit miroir sphérique convexe de forme circulaire.

Soient R_1 et R_2 les rayons de courbure respectifs des miroirs concave et convexe de celui que nous appellerons le grand œil de chat. Soient, de même R_3 et R_4 pour le petit œil de chat.

La différence de marche dans l'interféromètre est,

pour le rayon paraxial :

$$\delta = (2x_1 + R_1) - (2x_3 + R_3)$$

x_1 et x_3 sont les distances entre la séparatrice et le miroir concave de chaque oeil de chat.

Dans la configuration de compensation du champ, la séparatrice est conjuguée avec elle-même par chaque oeil de chat. Ce qui donne les conditions :

$$x_1 = -\frac{R_1^2}{4R_2} - \frac{R_1}{2} \quad \text{et} \quad x_3 = -\frac{R_3^2}{4R_4} - \frac{R_3}{2}$$

Le grandissement de cette conjugaison est unitaire car le système est par définition afocal de grossissement unitaire.

Dans l'interféromètre, la séparatrice fait office de diaphragme d'ouverture pour chaque oeil de chat. Pour deux rayons issus d'un point P sur la séparatrice, faisant un angle i entre eux, on obtient au point conjugué P' de la pupille de sortie (qui est situé sur la séparatrice) deux rayons faisant le même angle i entre eux (fig.II-2) en raison du grossissement unitaire. Dans l'approximation paraxiale, si P et P' sont conjugués, le chemin optique parcouru est le même pour les deux rayons. Par conséquent la différence de marche est nulle entre ces deux rayons et le rayon du premier anneau d'interférence est infini.

On observe donc en sortie de l'interféromètre à champ compensé, lorsque le nombre d'ondes de la source

varie, une variation d'intensité uniforme sur tout le champ d'interférence. Il suffira de concentrer le flux transmis par l'interféromètre sur un détecteur infrarouge sans avoir à se limiter au centre du champ d'interférence.

On obtient les deux signaux correspondant à la voie d'absorption du gaz et à la voie d'étalonnage, par détection synchrone. La modulation du faisceau laser est sélective quant aux modes de la cavité. En effet, un diapason de modulation à 2 kHz est placé dans le monochromateur au voisinage d'une fente de filtrage (voir annexe consacrée au monochromateur).

Les caractéristiques des miroirs constituant les yeux de chat sont les suivantes (en mm) :

	dimension	type	rayon de courbure
Grand oeil de chat			
M ₁	100X60	concave	R ₁ = 800
M ₂	∅ 10	convexe	R ₂ = 1000
Petit oeil de chat			
M ₃	100X45	concave	R ₃ = 300
M ₄	10	convexe	R ₄ = 200

La partie mécanique a été faite en duraluminium et en laiton. Les miroirs concaves sont montés sur des systèmes de réglage en orientation par le principe d'une rotule et les miroirs convexes sont montés sur une pièce orientable à l'aide d'un jeu de vis à 120° (fig.II.3).

La figure II.4 représente l'enregistrement des raies R14 de la bande ν_3 de $^{13}C^{16}O^{18}O$, et R5 de la bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ de $^{13}C^{16}O_2$, accompagnées des franges d'étalonnage de l'interféromètre. Pour une différence de marche:

$$\delta = (106 \pm 1) \text{ cm},$$

on a une interfrange:

$$i = (9,4 \pm 0,1) \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

Ce spectre a été obtenu en balayant le courant de polarisation de la diode à l'aide d'une fonction de son module de commande, à une vitesse lente (10^{-4} A/sec soit environ $10^{-4} \text{ cm}^{-1}/\text{sec}$). L'interféromètre d'étalonnage est à l'air libre et il n'y a aucun système de stabilisation de sa différence de marche, aussi le contraste des franges est-il faible (de l'ordre de 15%). On peut se rendre compte dans un premier temps, sur le système de franges, des problèmes de linéarité de la rampe de courant et on a pu par ailleurs constater la sensibilité microphonique de ce type d'interféromètre. De plus, nous désirons disposer d'un intervalle minimal de calibration plus faible que cette valeur de l'interfrange, ce qui n'est pas possible dans ce cas, car il est impossible de faire une interpolation linéaire entre deux franges.

L'utilisation de l'interféromètre à grande différence de marche du laboratoire, utilisé habituellement en spectrométrie par transformation de Fourier, permettra de résoudre en grande partie ces problèmes.

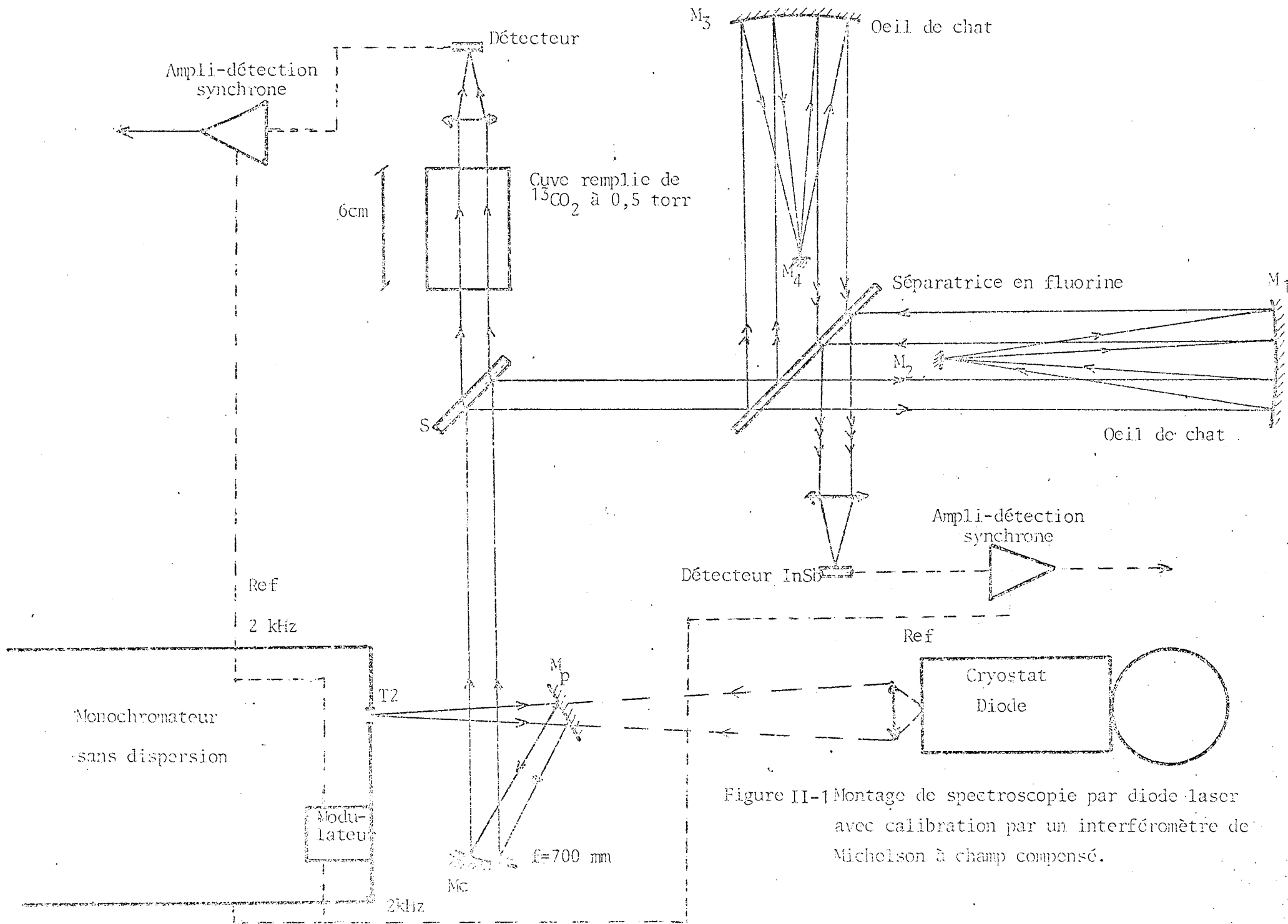


Figure II-1 Montage de spectroscopie par diode laser avec calibration par un interféromètre de Michelson à champ compensé.

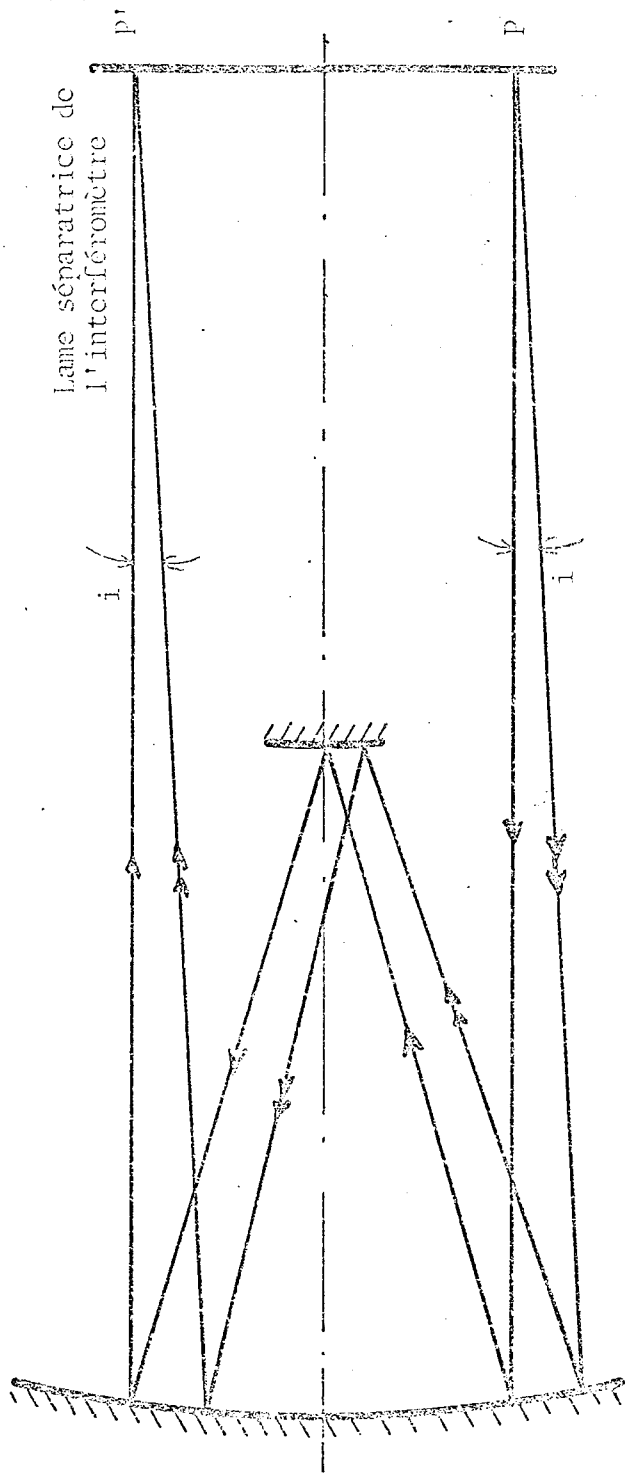


Figure II-2: Oeil de chat - Autoconjugaison de la lame séparatrice
d'un interféromètre de Michelson

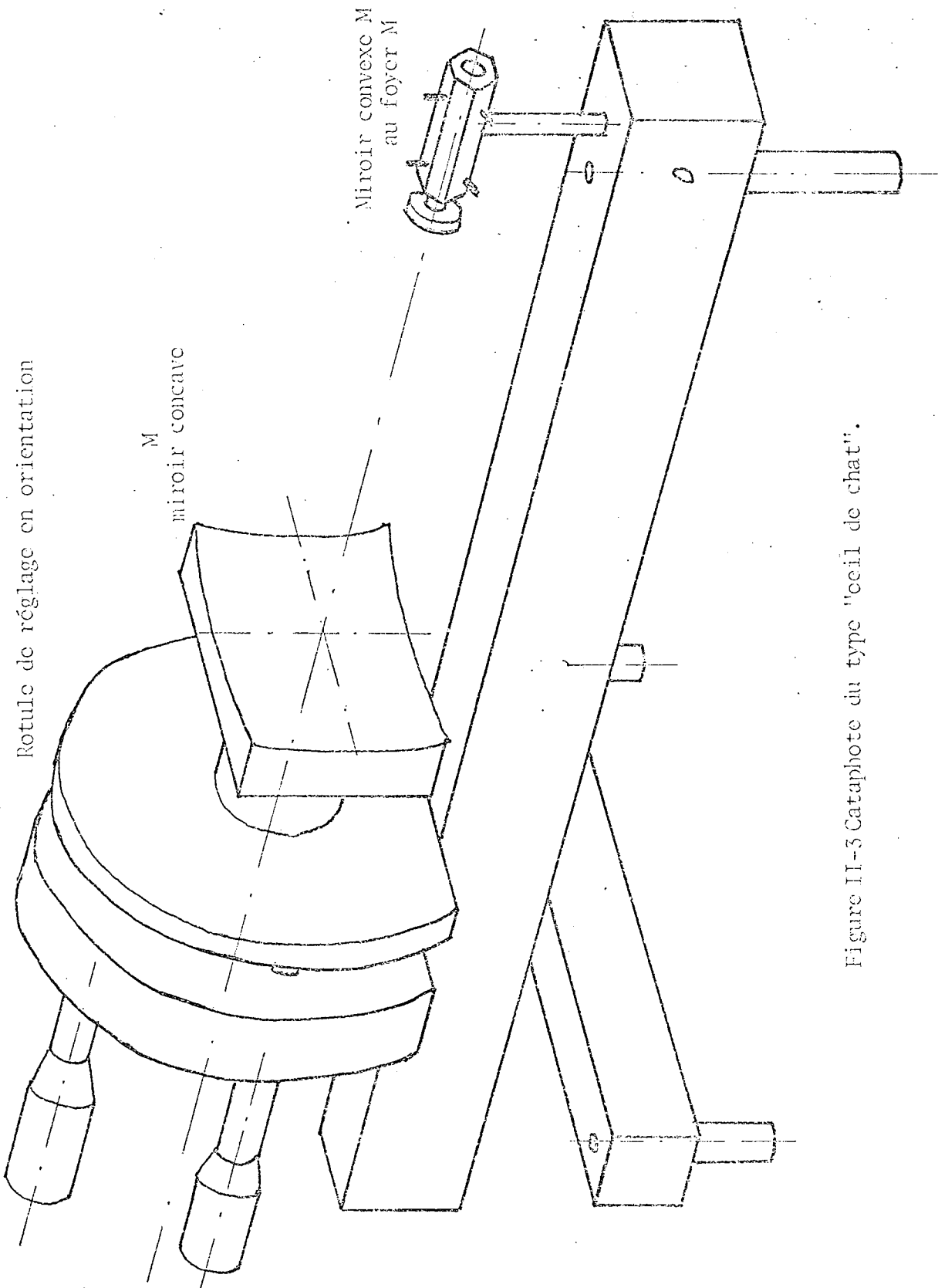


Figure II-3 Cataphote du type "œil de chat".

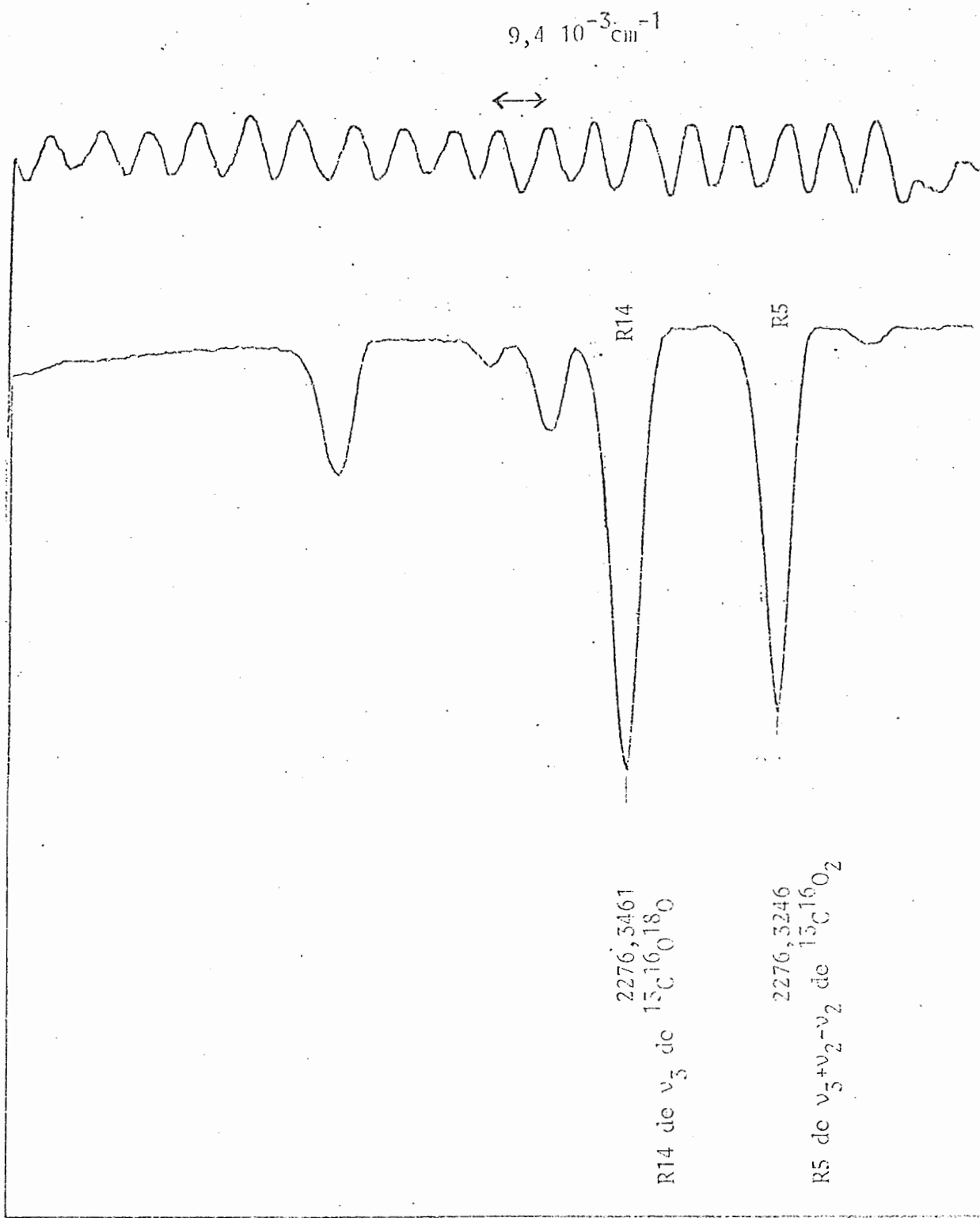


Figure II-4 : Spectre de CO_2 par diodes laser accompagné de franges de calibration par un interféromètre de Michelson à champ compensé.

CHAPITRE III

DESCRIPTION DU SPECTROMETRE A TRANSFORMATION
DE FOURIER

III.1) INTRODUCTION - OBJECTIF A ATTEINDRE EN SPECTROMETRIE PAR TRANSFORMATION DE FOURIER

Nous rappelons dans cette partie le principe de fonctionnement de l'interféromètre de Michelson à grande différence de marche du laboratoire, lorsqu'il est utilisé pour la spectroscopie par transformation de Fourier. Ses performances nous ont permis de lui associer la diode laser, afin de mesurer puis d'asservir le nombre d'ondes d'émission de celle-ci.

Nous revenons sur les possibilités offertes par la transformation de Fourier [14], ce qui nous semble justifié par la complémentarité de cette méthode avec celle de la spectroscopie par diode laser [15].

La construction de cet interféromètre par A. Valentin sous la direction de L. Henry, d'après les idées développées par P. Connes, [16] et avec sa collaboration, a répondu au besoin de disposer d'un appareil à la résolution suffisante pour étudier des spectres de vibration-rotation en largeur Doppler-Fizeau pour des longueurs d'ondes supérieures à $6\mu\text{m}$, ce qui signifie que l'on doit créer une différence de marche supérieure à 10 mètres. Rappelons en effet que la largeur à mi-hauteur d'une raie au profil Gaussien, $2\gamma_D$,

correspondant à l'élargissement spectral hétérogène par effet Doppler, est donnée par l'expression :

$$2\gamma_D = 7,16 \cdot 10^{-7} \cdot \sigma \cdot \sqrt{\frac{T}{M}}$$

T est la température absolue, σ le nombre d'ondes de la raie et M la masse de la molécule. *unités*

Pour prendre un exemple numérique typique :

- $\sigma = 1000 \text{ cm}^{-1}$
- $M = 108 \text{ g}$ (OsO4)
- $T = 300 \text{ K}$

Nous avons :

$$2\gamma_D = 0,001 \text{ cm}^{-1}$$

De plus pour étudier une bande de vibration-rotation, il est nécessaire de réaliser un spectre couvrant quelques centaines de cm^{-1} . Le spectre devra donc être composé de quelques 10^5 éléments spectraux.

Le choix de la transformation de Fourier s'imposait pour la réalisation de tels spectres, en raison des deux avantages bien connus de la méthode :

- avantage de Fellgett ou avantage multiplex [17].

Tous les éléments spectraux sont étudiés à chaque instant ~~par~~ *pas* le système récepteur de flux. Le gain par rapport à un système dispersif de même étendue optique peut s'exprimer de différentes façons :

* Pour un même temps de mesure t , le rapport signal sur bruit S/B est multiplié par M , M étant le nombre d'éléments spectraux étudiés.

* Pour un même S/B, t est divisé par M

* Pour un même S/B et un même t , on a un gain en résolution.

- avantage de Jacquinot [18]:

Le flux lumineux disponible à la sortie de l'interféromètre est plus important que dans le cas d'un appareil à fente. Pour comparer avec un spectromètre dispersif de même étendue optique, on remarquera que la différence de marche créée ne varie pas au premier ordre avec l'angle d'incidence sur le diaphragme d'ouverture de l'interféromètre de Michelson (la séparatrice), alors que c'est le cas lorsqu'on utilise un réseau de diffraction, si l'on considère que le diaphragme d'ouverture se trouve sur sa surface.

Ainsi le cahier des charges pour la construction de l'interféromètre s'exprime ainsi :

- créer une différence de marche supérieure à 10 mètres
- avoir une variation de la différence de marche pas à pas programmée [13], et une modulation interne du faisceau

- stabilisation de la différence de marche à chaque pas,
- synchronisation du déplacement, de la stabilisation, de l'intégration du signal et de son acquisition digitale,
- traitement numérique sur un grand nombre de points (4 millions maxi),
- possibilité de mise sous vide.

Nous décrirons dans un premier temps le dispositif optique de l'interféromètre, puis le principe de l'obtention de l'interférogramme, nous rappellerons ensuite les étapes du traitement numérique qui suit l'enregistrement. La mesure, la stabilisation et la commande de variation de la différence de marche, qui sont à la base des performances de l'appareil en spectrométrie par transformation de Fourier, mais aussi du système d'asservissement du nombre d'ondes émis par une diode laser, seront vues dans le chapitre suivant.

III.2) SYSTEME OPTIQUE

III.2.a) Optique infrarouge

La disposition générale des pièces optiques est imposée par le projet de mise sous vide de l'interféromètre et par la différence de marche maximale (13,6 mètres dans un premier temps, puis 22 mètres).

Un châssis de 14 mètres de long supporte une platine en acier de dimensions 1,7 X 1,2 mètres et un chemin de roulement de 12 mètres de long et 0,4 mètre de large. L'ensemble de l'optique est placé sur la platine, la disposition est celle d'un interféromètre de Michelson dont les deux bras sont parallèles, les traditionnels miroirs plan créant la différence de marche sont remplacés par des cataphotes du type "oeil de chat" [12], pour rendre cette différence de marche quasiment insensible aux défauts mécaniques du chemin de roulement.

La figure III.1 décrit la disposition optique et le trajet des faisceaux. Lors de l'enregistrement d'un interférogramme, la source blanche utilisée est un corps noir en graphite chauffé par effet Joule à 2000K et placé dans une atmosphère d'argon. Le bâtonnet est focalisé sur le trou d'entrée de l'interféromètre. Il s'agit d'un diaphragme à iris dont le diamètre d'ouverture est compris entre 2 et 15mm

Ce diaphragme est au foyer d'un télescope de type Cassegrain de focale équivalente $f_1 = 2428,6 \text{ mm}$, composé d'un grand miroir sphérique concave M1 ($\varnothing 120$, $f 600$) et d'un petit miroir sphérique convexe M2 ($\varnothing 30$, $f 170$) distant entre eux de $d = 472 \text{ mm}$.

Une fois collimaté, le faisceau infrarouge est dirigé par un miroir plan M3 (120X150), sur la lame séparatrice principale ($\varnothing 100$, $e 5$) de l'interféromètre. Les deux faisceaux issus de la séparatrice sont réfléchis par

les miroirs plans M4 et M5 ($\varnothing 270$), en direction des yeux de chat.

Les yeux de chat fixe et mobile sont identiques et constitués d'un grand miroir sphérique concave M6 ou M7 ($\varnothing 200$, $f 1000$) au foyer duquel se trouve un petit miroir sphérique convexe M8 ou M9 ($\varnothing 12$; $f 500$). Les faisceaux "retour" issus des yeux de chat, décalés horizontalement par rapport aux faisceaux "aller", sont réfléchis par les miroirs plans M4 et M5 vers la lame mélangeuse (identique à la séparatrice à λ dans le visible). Les deux faisceaux complémentaires issus de la mélangeuse sont dirigés vers les deux sorties de l'interféromètre.

Ces sorties peuvent être équipées au choix d'un télescope de type Cassegrain identique à celui de l'entrée, ou d'un télescope afocal constitué des miroirs M12 sphérique concave ($\varnothing 120$, $f 400$), et M13 sphérique convexe ($\varnothing 30$, $f 120$) distants entre eux de $d' = 280$ mm. On utilise un condenseur pour focaliser le faisceau sur le détecteur de flux.

Le diaphragme d'ouverture de l'interféromètre est constitué par la lame séparatrice. En raison de l'inclinaison du faisceau incident sur celle-ci (16°), les faisceaux émergents sont de section elliptique (100×90) et les faisceaux "aller" et "retour" dans chaque œil de chat sont d'entre-axe égal à 116 mm.

La pupille d'entrée de l'interféromètre est virtuelle, elle est de diamètre $\phi_e = 30$ mm et se trouve à

$D = 750$ mm du trou d'entrée. La pupille de sortie de l'interféromètre est aussi virtuelle, de diamètre $\phi_s = 25$ mm et à une distance $d'' = 118,7$ mm du miroir M13.

L'ouverture du trou d'entrée de l'interféromètre doit être telle que l'on ait une variation d'ordre d'interférence entre le bord et le centre du champ d'interférence qui soit inférieure à 1. Il faut donc s'assurer que le trou d'entrée reste le diaphragme de champ de l'appareil.

Calculons les étendues géométriques qui limitent l'entrée puis la sortie des faisceaux. Tout d'abord entre la pupille d'entrée et le diaphragme constitué par le petit miroir convexe M2 du télescope d'entrée, de diamètre ϕ_2 :

$$E = \left(\frac{\pi}{4} \right)^2 \cdot \frac{\phi_2^2 \cdot \phi_e^2}{(D-d)^2}$$

$$\phi_e = \phi_2 = 30 \text{ mm.} \quad D = 750 \text{ mm} \quad d = 472 \text{ mm}$$

donc :

$$E = 6,5 \text{ mm}^2 \cdot \text{sr.}$$

Puis entre la pupille de sortie et le trou pratiqué dans le miroir primaire du télescope de sortie de diamètre ϕ' :

$$E' = \left(\frac{\pi}{4}\right)^2 \cdot \frac{\phi' \phi_s^2}{(d' + d'')^2}$$

$$\phi' = 30 \text{ mm} \quad \phi_s = 25 \text{ mm} \quad d' = 118,7 \text{ mm} \quad d'' = 280 \text{ mm}$$

donc :

$$E' = 2,2 \text{ mm}^2 \cdot \text{sr.}$$

Le diamètre du trou d'entrée de l'interféromètre est limité à $\phi_T = 15 \text{ mm}$, ce qui correspond à une étendue géométrique E'' entre lui-même et la pupille d'entrée.

$$E'' = \left(\frac{\pi \cdot \phi_e \cdot \phi_T}{4D}\right)^2$$

$$\phi_e = 30 \text{ mm} \quad \phi_T = 15 \text{ mm} \quad D = 750 \text{ mm}$$

donc :

$$E'' = 0,22 \text{ mm}^2 \cdot \text{sr}$$

On a bien $E'' < E' < E$

C'est donc effectivement le trou d'entrée qui reste dans tous les cas le diaphragme de champ de l'interféromètre, et le diamètre angulaire de celui-ci vu de la séparatrice doit être inférieur au diamètre angulaire du premier anneau d'interférence (cf II.1).

Soit Ω l'angle solide de champ, on a pour le cas limite :

$$\Omega = 2\pi \cdot (1 - \cos \theta_1)$$

avec $\theta_1 = \sqrt{\frac{2\lambda}{\delta}}$, qui est assez faible pour

écrire :

$$\Omega = \pi \cdot \theta_1^2$$

Compte tenu de:

$$R_o = \frac{\sigma}{\sigma_r} = \frac{\delta}{\lambda}$$

σ_r étant la résolution en nombre d'ondes, on obtient la relation:

$$R_o \cdot \Omega = 2\pi$$

R_o étant le pouvoir de résolution théorique pour la longueur d'onde λ et la différence de marche δ .

on a une modulation nulle.

III.2.b) Optique laser de référence

Le faisceau laser (HeNe) de mesure de la différence de marche est introduit dans l'interféromètre par la voie symétrique de l'entrée infrarouge. Il est centré sur le faisceau infrarouge et se trouve dans la zone non-utilisée par ce dernier en raison de l'obturation centrale due au système Cassegrain des télescopes, de même les lames quart d'onde L_1 et L_2 placées sur son trajet occupent cet espace d'obturation. Notons que l'emploi sur la séparatrice et sur la mélangeuse d'un revêtement métallique afin d'assurer le partage et la recombinaison des flux, assure l'égalité du trajet optique parcouru par le faisceau visible de référence, avec le rayon moyen (fictif en raison de l'obturation centrale) du faisceau infrarouge, on n'a en effet pas besoin d'un revêtement spécial pour le faisceau laser. L'ensemble des polariseurs qui apparaissent sur le

schéma optique ainsi que leur utilité, seront décrits au chapitre IV, qui traite de l'obtention du signal d'erreur.

III.3) REALISATION D'UN SPECTRE PAR TRANSFORMATION DE FOURIER

III.3.a) Principe

Rappelons le principe d'obtention d'un spectre par transformation de Fourier avec l'interféromètre du laboratoire. Sa différence de marche varie de manière discrète entre zéro et une valeur maximale δ_{\max} , elle est stabilisée à chaque pas de l'oeil de chat mobile grâce à une boucle d'asservissement (décrite au chapitre IV), utilisant le signal d'erreur interférométrique élaboré grâce à un laser hélium-néon stabilisé sur son creux central d'accord (Lambdip) à la longueur d'onde :

$$\lambda_0 = 6328 \text{ \AA}$$

Afin d'éliminer le flux lumineux continu transmis par l'interféromètre, on module la différence de marche et on effectue une détection synchrone du signal. Celui-ci est alors intégré pendant chaque état stationnaire de l'oeil de chat mobile en déplacement pas à pas. Il y a donc échantillonnage de l'interférogramme, enregistrement sur bande magnétique et sur mini-ordinateur, puis traitement informatique par transformation de Fourier rapide discrète,

pour aboutir enfin à la représentation du spectre.

Cette méthode permet de définir la position de chaque échantillon avec précision, d'utiliser au mieux le temps de mesure, et d'avoir une bonne définition de la fonction d'appareil effectivement enregistrée. De plus, on détermine la position relative en nombre d'ondes des raies d'un spectre, à partir d'une raie d'émission unique, ce qui dispense de l'utilisation d'étalon secondaire ou de spectre de référence.

III.3.b) Obtention de l'interférogramme

Supposons l'interféromètre éclairé par un faisceau lumineux issu d'une source dont la répartition spectrale d'intensité est donnée par la fonction B(σ). Typiquement, il s'agit du faisceau issu d'une source blanche et ayant traversé une cuve d'absorption contenant le gaz à étudier, avant d'être focalisé sur le diaphragme d'entrée.

L'interféromètre, pour une différence de marche δ, transmet un faisceau semblant provenir d'une source d'intensité :

$$I(\delta) = \int_0^{\infty} B(\sigma) \cdot \cos^2(\pi\sigma\delta) \cdot d\sigma$$

On a tout intérêt si l'on utilise un détecteur quantique rapide, à moduler le faisceau infrarouge à la fréquence maximale possible, afin de diminuer le bruit en 1/f

lors de la détection synchrone. Le signal, une fois démodulé et intégré, constitue l'interférogramme $I(\delta)$.

On applique une modulation en trapèze assez proche d'un créneau, à la différence de marche, ce type de modulation ayant un meilleur rendement qu'une modulation sinusoidale par exemple [19]; soit A l'amplitude de cette modulation. Le signal démodulé sera la différence des signaux correspondant aux crêtes de la modulation pour chaque différence de marche moyenne δ .

Soit :

$$I(\delta) = \int_0^{\infty} B(\sigma) \cdot \{ \cos^2[\pi\sigma(\delta-A/2)] - \cos^2[\pi\sigma(\delta+A/2)] \} \cdot d\sigma$$

qui devient :

$$I(\delta) = \int_0^{\infty} B(\sigma) \cdot \sin(\pi\sigma A) \cdot \sin(2\pi\sigma\delta) \cdot d\sigma$$

On a donc introduit une fonction de filtrage $\sin(\pi\sigma A)$ et on choisira l'amplitude de modulation A de manière à avoir le signal optimal au centre de la bande spectrale à étudier. Dans notre cas, cette amplitude est codée en multiples de λ/S .

Si on veut faire un traitement informatique des données enregistrées, il faut échantillonner l'interférogramme afin de pouvoir le représenter, ainsi que le spectre, par un nombre fini de valeurs discrètes. Et pour pouvoir profiter du théorème d'échantillonnage de Shannon, il faut de plus que $I(\delta)$ et $B(\sigma)$ soient bornés.

On va donc utiliser un filtre spectral passe-bande (ou se servir de la longueur d'onde de coupure du détecteur), ce qui en outre limite la détection au flux lumineux qui correspond à la région étudiée du spectre; la différence de marche, donc l'interférogramme, est de toute façon limitée par la valeur δ_{max} . Au niveau de la représentation mathématique, la fonction $B(\sigma)$ est à multiplier par une fonction "porte" $a(\sigma)$ égale à 1 pour

$$\sigma_1 < \sigma < \sigma_2$$

et nulle partout ailleurs.

On a donc:

$$I(\delta) = \int_{-\infty}^{+\infty} B(\sigma) \cdot \sin(\pi \cdot \sigma \cdot k \cdot \frac{\lambda_0}{8}) \cdot a(\sigma) \cdot \sin(2\pi \cdot \sigma \cdot \delta) d\sigma$$

L'interférogramme $I(\delta)$ est donc la transformée en sinus, du produit de convolution du spectre $B(\sigma)$ par la fonction de filtrage :

$$\sin(\pi \cdot \sigma \cdot k \cdot \lambda_0 / 8) \cdot a(\sigma)$$

La différence de marche augmentant pas à pas, on enregistre une succession de valeurs $I(n \cdot \delta_p)$, n variant de 0 à N et δ_p étant le pas de variation de la différence de marche. δ_p est programmable et codé en multiples de $\lambda_0 / 8$ comme nous le verrons par la suite.

Afin d'utiliser le formalisme de la transformation de Fourier discrète, il faut donc introduire une seconde fonction "porte" $b(n)$ égale à 1 pour $0 \leq n \leq N$ et nulle partout ailleurs.

La représentation du spectre obtenue par transformation de Fourier discrète en sinus, est donc proportionnelle à :

$$S(\sigma) = \sum_{n=0}^N b(n) \cdot I_n \cdot \sin(2\pi \cdot \sigma \cdot n \cdot \delta_p)$$

avec: $I_n = I(n \cdot \delta_p)$

On montre [14] que pour un spectre qui serait étendu de 0 à σ_{\max} , il est suffisant de prendre un pas:

$$\delta_p = \frac{1}{2 \cdot \sigma_{\max}}$$

étant donné que :

$$N \cdot \delta_p = \delta_{\max} = \frac{1}{\sigma_r}$$

σ_r étant la résolution à obtenir en cm^{-1} . Le nombre de points à enregistrer est donc

$$N = 2 \frac{\sigma_{\max}}{\sigma_r} = 2 R_{\max}$$

R_{\max} étant le pouvoir de résolution maximum du spectre (pour σ_{\max}).

Maintenant, pour un spectre limité au domaine (σ_1, σ_2) deux cas se présentent :

$$* \sigma_2 = k \cdot (\sigma_2 - \sigma_1) = k \cdot \Delta\sigma \quad k \text{ est entier.}$$

il faut que :

$$\delta_p \leq \frac{1}{2 \Delta\sigma}$$

* $\sigma_2 = k \cdot \Delta\sigma + \epsilon$ ϵ réel, est inférieur à 1

On élargit le domaine spectral étudié à (σ_1, σ_2)

avec $\Delta\sigma^2 = \sigma_2 - \sigma_1 > \Delta\sigma$

et on prend :

$$\delta_p \leq \frac{1}{2 \cdot \Delta\sigma^2}$$

L'enregistrement peut alors se limiter au nombre de points:

$$N = 2 \cdot \frac{\Delta\sigma}{\sigma_r} \quad \text{ou} \quad 2 \cdot \frac{\Delta\sigma^2}{\sigma_r}$$

III.3.c) Traitement numérique

Ces valeurs successives du signal représentant l'interférogramme échantillonné sont enregistrés après digitalisation sur une bande magnétique puis sont traitées par l'algorithme de Cooley et Tuckey de Transformation de Fourier Rapide (TFR).

La chaîne de programmes aboutissant à la représentation du spectre et au pointé des raies se trouve en bibliothèque sur l'ordinateur du CIRCE [20] et permet actuellement de traiter jusqu'à 4 millions de points. La suite des opérations est la suivante :

les N échantillons de l'interférogramme sont complétés par des valeurs nulles jusqu'au nombre 2^m

supérieur à N.

On applique alors la Transformation de Fourier Rapide sur ces 2^N points ce qui donne les 2^N points primaires du spectre.

On fait alors une interpolation et une apodisation, cette dernière étant choisie par l'opérateur, pour obtenir 5×2^N points secondaires du spectre.

Sur ce spectre échantillonné, on applique les programmes de tracé et de pointé de raies. On obtient une précision de 10^{-5} cm^{-1} sur la position relative des raies en nombre d'ondes du spectre, lorsque celles-ci sont isolées. Cette position est relative car il faut tenir compte de la dispersion spectrale de l'air; le spectromètre n'étant pas encore sous vide, il peut en effet se produire une translation d'ensemble du spectre comprise entre $\pm 3 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$.

Nous donnons dans le chapitre suivant un exemple de caractéristiques de spectre obtenu par transformation de Fourier, mais il est nécessaire auparavant de décrire le système de commande de la différence de marche qui fait par ailleurs partie intégrante du dispositif de spectroscopie par diodes laser, lequel sera décrit au chapitre V.

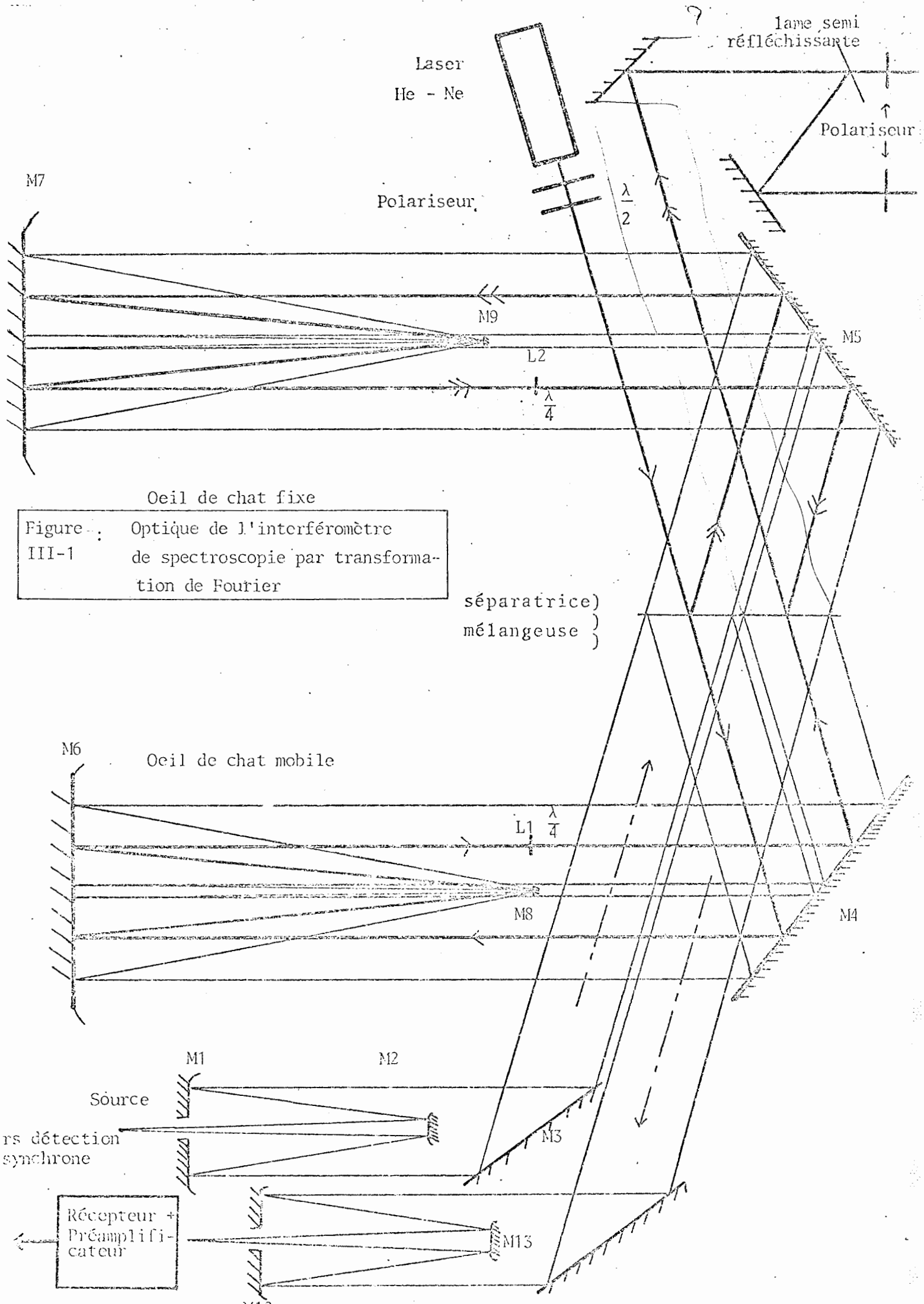


Figure : Optique de l'interféromètre III-1 de spectroscopie par transformation de Fourier

CHAPITRE IV

MESURE ET ASSERVISSEMENT DE LA DIFFERENCE DE
MARCHE - EXEMPLE DE SPECTRE PAR TRANSFORMATION
DE FOURIER

Nous allons dans ce chapitre étudier l'ensemble du système de stabilisation et de commande de la variation de la différence de marche, de notre interféromètre de Michelson. Ce système a déjà été décrit à propos d'un autre appareil [16] destiné à la spectroscopie astronomique par transformation de Fourier, il nous semble utile cependant de reprendre sa description car il est à la base du dispositif de spectroscopie par diode laser en mode asservi que nous avons développé et qui fera l'objet du chapitre suivant.

Nous verrons dans un premier temps le fonctionnement de l'oeil de chat mobile, puis nous décrirons successivement le procédé de mesure de la différence de marche, l'élaboration du signal d'erreur de sa boucle d'asservissement, la façon dont on commande le déplacement de l'oeil de chat ainsi que l'acquisition digitale de l'interférogramme infrarouge. Enfin nous donnerons un exemple pratique de spectre réalisé par transformation de Fourier, afin de mettre en évidence les performances de notre interféromètre.

IV.1) MOUVEMENT DE L'OEIL DE CHAT

La figure IV.1 représente le principe de fonctionnement de l'oeil de chat mobile.

L'oeil de chat lui-même, c'est-à-dire l'ensemble des

deux miroirs sphériques, est suspendu à un chariot mobile par l'intermédiaire de quatre bielles (AB et CD visibles sur la figure) formant un double parallélogramme. Les axes de rotation sont remplacés par des pivots fictifs, formés de deux lames de ressort dont la raideur est ajustée de telle façon que le système soit quasiment astatique.

Le chariot mobile est entraîné par un moteur continu et un ensemble tachymètre-potentiomètre fournit des signaux proportionnels à sa vitesse et sa position.

L'oeil de chat est mis en mouvement par rapport au chariot grâce à un moteur électrodynamique semblable à celui équipant un haut-parleur. L'aimant permanent est solidaire du chariot et la bobine est solidaire de l'oeil de chat.

Ce système de translation de l'oeil de chat servira à asservir la différence de marche au système de franges d'interférences du laser de référence, du moins pour les corrections à basses fréquences, c'est-à-dire inférieures à 500 Hz. Pour ce qui est des fréquences supérieures, les corrections seront effectuées par translation longitudinale des petits miroirs des yeux de chat, lesquels sont fixés sur leurs supports par l'intermédiaire de cales piézo-électriques. La distance entre les miroirs des yeux de chat est alors modifiée mais la variation de cette distance est limitée à 10 μm par les possibilités des cales, ce qui rend la défocalisation des faisceaux lumineux infrarouges négligeable.

Par contre, pour éviter que la bobine ne sorte de l'entre-fer, et pour que le moteur électrodynamique travaille toujours dans les mêmes conditions, un capteur de position sans frottement mesure le déplacement de l'oeil de chat par rapport à son chariot porteur et la position de ce dernier est corrigée afin qu'il suive l'oeil de chat.

Le signal d'erreur interférométrique sur la différence de marche, est envoyé sur la bobine du moteur linéaire et sur la cèle piézo-électrique. Si une perturbation se présente, de type atmosphérique, microphonique, ou de commande de déplacement, l'oeil de chat commence à se déplacer et le cas échéant la distance entre miroirs se modifie. Le capteur de position transmet l'information de déplacement au moteur continu qui met en mouvement le chariot mobile en conséquence; avec une erreur statique de quelques microns et un temps de réponse de l'ordre de la seconde. Les roulettes du chariot sont posées sur des rails par contact "plan-tonneau".

Ainsi la suspension travaille dans des conditions où la force de rappel est non mesurable et le déplacement de l'oeil de chat s'effectue sans frottement. La différence de marche peut être asservie avec une erreur de quelques Angströms, observée sur le trajet du faisceau de référence, pour des temps d'intégration de l'ordre de 10 msec.

IV.2) MESURE DE LA DIFFERENCE DE MARCHE

Nous allons étudier l'élaboration des signaux optiques détectés par les photomultiplicateurs, puis celle du signal électrique de mesure de la différence de marche de l'interféromètre. Dans la partie optique, nous négligerons les déphasages des ondes lors des réflexions sur la séparatrice principale et la mélangeuse car ils se compensent théoriquement. Le faisceau du laser HeNe de référence est collimaté puis polarisé linéairement avant son entrée dans l'interféromètre. Une lame demi-onde permet ensuite d'ajuster l'azimut de sa polarisation.

Représentons le champ électrique de l'onde plane, au niveau de la séparatrice de l'interféromètre par :

$$\vec{E} = \cos(\omega t) \cdot \vec{u}$$

avec

$$\omega = 2\pi \frac{v}{\lambda_0}$$

v étant la vitesse de propagation de l'onde dans l'air et $\lambda_0 = 6328 \text{ \AA}$. \vec{u} est le vecteur unitaire de polarisation.

Après séparation des faisceaux et propagation sur les deux voies optiques créant la différence de marche δ , on obtient au niveau des deux lames quart-d'onde les deux champs électriques :

$$\vec{E}_1 = \cos [\omega t] \cdot \vec{u}$$

$$\vec{E}_2 = \cos \left[\omega \left(t - \frac{\delta}{v} \right) \right] \cdot \vec{u}$$

en négligeant le déphasage commun

$$\omega \frac{z}{v}$$

produit par le trajet commun (z) des faisceaux, pour une différence de marche nulle.

Les lames quart-d'onde sont orientées de telle façon que leurs lignes neutres fassent un angle de 45° avec l'azimut \vec{u} de \vec{E}_1 et \vec{E}_2 . Soient \vec{x} et \vec{y} les vecteurs unitaires définissant ces lignes neutres. Les axes lents des deux lames quart-d'onde L_1 et L_2 font un angle de 90° entre eux.

On a donc avant passage du faisceau dans ces lames :

$$\vec{E}_1 = \cos [\omega t] \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{x} + \vec{y})$$

$$\vec{E}_2 = \cos \left[\omega \left(t - \frac{\delta}{v} \right) \right] \cdot (\vec{x} + \vec{y}) \cdot \frac{1}{\sqrt{2}}$$

Les champs électriques deviennent en sortie des lames quart-d'onde :

$$\vec{E}_1' = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \left\{ \cos [\omega t] \cdot \vec{x} + \cos \left[\omega t + \frac{\pi}{2} \right] \cdot \vec{y} \right\}$$

$$\vec{E}_2' = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \left\{ \cos \left[\omega \left(t - \frac{\delta}{v} \right) \right] \cdot \vec{x} + \cos \left[\omega \left(t - \frac{\delta}{v} \right) - \frac{\pi}{2} \right] \cdot \vec{y} \right\}$$

qui représentent deux ondes circulaires gauche et droite.

La recombinaison des faisceaux par la mélangeuse de l'interféromètre donne un champ électrique :

$$\begin{aligned} \vec{E} &= \vec{E}'_1 + \vec{E}'_2 \\ &= \sqrt{2} \cdot \cos \left[\omega t - \frac{\delta}{\lambda_0} \right] \cdot \left\{ \cos \left(\frac{\pi \delta}{\lambda_0} \right) \vec{x} - \sin \left(\frac{\pi \delta}{\lambda_0} \right) \cdot \vec{y} \right\} \\ &= \sqrt{2} \cdot \cos \left[\omega t - \pi \frac{\delta}{\lambda_0} \right] \cdot \vec{v} \end{aligned}$$

\vec{E} représente une onde plane polarisée rectilignement suivant le vecteur \vec{v} , d'intensité moyenne constante et dont l'azimut dépend de la différence de marche δ , \vec{v} faisant un demi-tour pour chaque variation λ_0 de δ .

Le faisceau obtenu par recombinaison au niveau de la mélangeuse est ensuite partagé en deux par une lame séparatrice et sur chaque trajet ainsi obtenu est placé un polariseur puis un photomultiplicateur.

Les directions de ces polarisations font un angle de 45° entre elles, soient \vec{i} et \vec{j} leurs vecteurs unitaires.

Prenons par exemple :

$$\begin{aligned} \vec{i} &= \cos(\alpha) \cdot \vec{x} + \sin(\alpha) \vec{y} \\ \vec{j} &= \cos\left(\alpha + \frac{\pi}{4}\right) \cdot \vec{x} + \sin\left(\alpha + \frac{\pi}{4}\right) \cdot \vec{y} \end{aligned}$$

On a alors :

$$\begin{aligned} \vec{v} \cdot \vec{i} &= \cos \left(\pi \cdot \frac{\delta}{\lambda_0} + \alpha \right) \\ \vec{v} \cdot \vec{j} &= \cos \left(\pi \cdot \frac{\delta}{\lambda_0} + \alpha + \pi/4 \right) \end{aligned}$$

et si on fait $\alpha = 0$, les photomultiplicateurs recevront les ondes planes dont les champs électriques sont :

$$\vec{E}_i = \sqrt{2} \cdot \cos \left[\omega t - \pi \frac{\delta}{\lambda_0} \right] \cdot \cos \left[\pi \frac{\delta}{\lambda_0} \right] \cdot \vec{i}$$

$$\vec{E}_j = \sqrt{2} \cdot \cos \left[\omega t - \pi \frac{\delta}{\lambda_0} \right] \cdot \cos \left[\pi \frac{\delta}{\lambda_0} + \frac{\pi}{4} \right] \cdot \vec{j}$$

En sortie des photomultiplicateurs, lesquels sont des détecteurs quadratiques dont la fréquence de coupure est de l'ordre d'une dizaine de MHz, on obtient les signaux suivants :

$$S_1 = I_1 \cdot \cos^2 \left[\pi \cdot \frac{\delta}{\lambda_0} \right]$$

$$S_2 = I_2 \cdot \cos^2 \left[\pi \cdot \frac{\delta}{\lambda_0} + \frac{\pi}{4} \right]$$

Les termes I_1 et I_2 expriment que les amplitudes ne sont pas rigoureusement égales en sortie des photomultiplicateurs. On obtient ainsi deux signaux sinusoïdaux en quadrature; une période de ces sinusoides correspondant à une variation λ_0 de la différence de marche. Les cales piézo-électriques de l'oeil de chat fixe, sur laquelle est collé le petit miroir convexe, servent à la fois à corriger les variations indésirables à haute fréquence et à produire une modulation de la différence de marche. Sur les quinze disques qui constituent l'empilement, deux d'entre eux sont utilisés pour produire cette modulation dont l'amplitude est de l'ordre du dixième de λ_0 , à la fréquence $f_0 = 100$ kHz. Une telle amplitude produit une atténuation négligeable sur le signal infrarouge.

La différence de marche au temps t , pour une valeur

moyenne désirée δ_0 s'écrit :

$$\delta = \delta_0 + \varepsilon \cdot \lambda_0 \cdot \sin(2\pi \cdot f_0 \cdot t)$$

avec $\varepsilon \ll 1$.

Cette modulation permettra un traitement digital du signal de mesure de la différence de marche et le choix d'une fréquence de modulation aussi élevée permet de corriger la différence de marche avec une fréquence de coupure de quelques dizaines de kHz.

Un filtre large bande centré sur 100 kHz et donnant une forte atténuation à la composante $2f_0$, isole la modulation centrée sur f_0 et les signaux donnés par les photomultiplicateurs deviennent, en négligeant les harmoniques:

$$S_1' = \pi \cdot I_1 \cdot \varepsilon \cdot \sin\left(2\pi \frac{\delta_0}{\lambda_0}\right) \cdot \sin(2\pi \cdot f_0 \cdot t)$$

$$S_2' = \pi \cdot I_2 \cdot \varepsilon \cdot \cos\left(2\pi \frac{\delta_0}{\lambda_0}\right) \cdot \sin(2\pi \cdot f_0 \cdot t)$$

Un des signaux (S_1') est atténué afin d'égaliser les amplitudes, tandis que l'autre signal est déphasé de 90°

exactement à f_0 , on obtient alors :

$$S_1'' = \pi \cdot I \cdot \epsilon \cdot \sin\left(2\pi \frac{\delta}{\lambda_0}\right) \cdot \sin(2\pi \cdot f_0 \cdot t)$$

$$S_2'' = \pi \cdot I \cdot \epsilon \cdot \cos\left(2\pi \frac{\delta}{\lambda_0}\right) \cdot \cos(2\pi \cdot f_0 \cdot t)$$

Ces deux signaux sont finalement additionnés, on a alors :

$$S = S_1'' + S_2'' = \pi \cdot I \cdot \epsilon \cdot \cos 2\pi \left(f_0 \cdot t - \frac{\delta_0}{\lambda_0}\right)$$

Et si on suppose que l'oeil de chat mobile se déplace à une vitesse constante v_0 . Ce qui donne :

$$\delta_0 = v_0 \cdot t$$

On a alors :

$$S = \pi \cdot I \cdot \epsilon \cdot \cos \left[2\pi \left(f_0 - \frac{v_0}{\lambda_0} \right) t \right]$$

qui est un signal dont l'amplitude reste constante mais dont la pulsation varie algébriquement en fonction de δ_0 .

IV.3) OBTENTION DU SIGNAL D'ERREUR. - ASSERVISSEMENT

Il s'agit à partir de ce signal, d'établir la boucle d'asservissement qui permettra la stabilisation et la commande de variation pas à pas contrôlée de la différence de marche.

L'élaboration optique et électronique du signal de mesure S fait partie de la boucle d'asservissement

représentée sur la figure IV.2 .

S est échantillonné et chacun de ses passages à zéro produit une impulsion envoyée dans un compteur (B). Le nombre d'impulsions comptées est codé sur 8 bits et un additionneur digital effectue la soustraction avec la valeur donnée par un compteur de référence (A). Les impulsions de référence sont synchronisées sur le signal d'horloge qui sert à commander la modulation à 100 kHz. Ce compteur peut en outre recevoir des impulsions venant du déphaseur programmable qui sert à commander les variations de la différence de marche. Si ce déphaseur n'est pas en fonction, le compteur A correspond à un état stationnaire de la différence de marche.

À la sortie de l'additionneur, un convertisseur digital-analogique fournit le signal d'erreur E qui sera envoyé par l'intermédiaire d'un filtre sélectif, en contre-réaction sur le moteur électrodynamique et les cales piézo-électriques des yeux de chat. Ainsi, toute perturbation accidentelle modifie S, ce qui entraîne un accroissement algébrique de E, car le signal de référence R n'a pas été ^{modifié}, puis une action du moteur électrodynamique et/ou des cales piézo-électriques des yeux de chat, qui tend à compenser la variation de S.

Si maintenant on veut faire varier la différence de marche, par action du déphaseur programmable, le signal de référence R est modifié et la variation résultante du signal

d'erreur provoque le déplacement de l'oeil de chat.

Chaque impulsion fournie par le compteur A entraîne une variation de $\lambda_0/8$ de la différence de marche dans un sens ou dans l'autre en fonction du signe de l'impulsion. On peut coder la variation de la différence de marche par multiples de $\lambda_0/8$ soit environ 791 Å, le facteur multiplicatif étant compris entre 0 et 1000.

La plage de réponse linéaire en sortie de l'additionneur est $256 \times \lambda_0/8$, soit une variation de différence de marche de $\pm 20 \mu\text{m}$ au niveau de l'oeil de chat. Remarquons que ces valeurs correspondent à ± 32 franges d'interférence du laser HeNe, alors que si on utilisait une méthode utilisant directement ces franges, on serait limité à environ 1/3 de frange.

IV.4) COMMANDE DE DEPLACEMENT DE L'OEIL DE CHAT

(figure IV.3)

Il est nécessaire de rendre compatible le déplacement et l'asservissement en position de l'oeil de chat, pendant la durée d'intégration d'une mesure, au cours d'un spectre. Une carte électronique assure la synchronisation entre le signal de modulation interne et les déplacements de l'oeil de chat, ainsi que le début et la fin de l'intégration du signal infrarouge. On ne permet ainsi l'intégration que si :

- le déplacement et la stabilisation de l'oeil de

chat sont terminés

- aucune commande d'interruption n'est en fonction.

Elle commence et se termine sur des fronts de montée du signal de modulation interne de la différence de marche (celle qui sert à la détection synchrone infrarouge, cf III.3.b). La durée de l'intégration du signal est programmable de 1 à 1000 périodes de modulation interne et divisible par 10 par une simple commutation. Il existe une fonction de temporisation qui permet la stabilisation de l'oeil de chat mobile après son déplacement, sa durée est réglable de 0,5 à 20 msec par un potentiomètre. La durée de déplacement de l'oeil de chat, qui débute aussi sur un front de montée du signal de modulation interne, est établie par un dispositif indépendant, elle est de l'ordre de quelques millisecondes à quelques dizaines de millisecondes selon la longueur du pas.

L'échantillon d'interférogramme est codé sur 16 bits dont 4 correspondent à une valeur d'échelle et au signe de la valeur.

Les valeurs sont enregistrées d'une part par blocs de 256 sur une bande magnétique qui servira au traitement numérique sur un grand nombre de points, d'autre part séquentiellement sur la mémoire d'un mini-ordinateur (IBM-PC) pour un traitement local sur les 10.000 premiers points.

En tenant compte de toutes ces valeurs numériques, on peut produire des vitesses de déplacement de l'oeil de

chat comprises entre 0 et 1,5 mm/sec..

IV.5) REALISATION DES SPECTRES

Sur le plan pratique, la réalisation d'un spectre par transformation de Fourier commence par le choix des conditions expérimentales de pression, température et longueur du trajet optique dans le gaz, en fonction des phénomènes à étudier.

Puis à partir du domaine spectral d'étude, on peut déterminer le pas d'échantillonnage de l'interférogramme:

$$\delta_p = \frac{1}{2(\sigma_{\max} - \sigma_{\min})}$$

δ_p sera en fait le multiple de $\frac{\lambda_0}{8}$ le plus proche de sa valeur.

En fonction de la résolution σ_r désirée, on obtient alors la différence de marche maximale et le nombre de points à enregistrer :

$$\delta_{\max} = \frac{1}{\sigma_r}$$

$$N \approx \frac{\delta_{\max}}{\delta_p} = \frac{1}{\delta_p \cdot \sigma_r}$$

L'amplitude de modulation de la différence de marche servant à la détection synchrone, est choisie pour favoriser

un nombre d'onde σ_0 du spectre :

$$A = \frac{1}{2 \cdot \sigma_0}$$

La fréquence de cette modulation doit être adaptée à la rapidité du détecteur utilisé, lequel est choisi en fonction du domaine spectral étudié, ainsi qu'aux constantes de temps des asservissements.

Le domaine spectral est limité généralement par un filtre interférentiel et éventuellement par la longueur d'onde de coupure du détecteur.

Enfin, comme le contraste du signal transmis par l'interféromètre lorsque la différence de marche varie, chute rapidement, on modifie le gain de l'amplification en certains points et on tient compte de ces changements de gain lors du traitement numérique.

L'enregistrement de l'interférogramme peut être lancé et se poursuit automatiquement pendant une durée pouvant atteindre 48 heures.

Pour prendre un exemple numérique, voici les paramètres d'un spectre réalisé récemment [21]. Il s'agit de la molécule d'allène, C_3H_4 :

- pression : 0,095 Torr
- épaisseur de gaz traversée : 5 mètres (cuve à réflexions multiples)

- température du gaz : - 60°C (carbo-glace)
- détecteur : GeHg ($\sigma > 730 \text{ cm}^{-1}$)
- + filtre refroidi à 77 k passe-bas ($\nu < 890 \text{ cm}^{-1}$)
- incrément de différence de marches: $\delta p = 272 \times \frac{\lambda_0}{8} = 21 \text{ } \mu\text{m}$
- amplitude de modulation : $A = 79 \times \frac{\lambda_0}{8} = 6 \text{ } \mu\text{m}$ ($\sigma_0 = 800 \text{ cm}^{-1}$)
- fréquence de modulation : 341 Hz
- nombre de points enregistrés : $N = 350.000$
- différence de marche maximale : $\delta_{\text{max}} = 7,5 \text{ mètres}$
- temps d'enregistrement : 25 heures.

Entre le premier et les derniers points enregistrés, il y a multiplication par 200 du gain.

- Domaine de traitement informatique : (TFR)

$$697 - 929 \text{ cm}^{-1}$$

- Nombre de points secondaires du spectre : 2.621.440
- Domaine de pointé et tracé : $730 - 900 \text{ cm}^{-1}$
- échelle du tracé : $0,02 \text{ cm}^{-1}/\text{cm}$
- nombre de raies pointées : environ 10.000
- largeur d'un élément spectral :

$$\frac{929 - 697}{524.288} = 4.10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

qui devient $7.10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ après apodisation.

Remarque : l'échantillonnage choisit pour l'interférogramme est surabondant par rapport au domaine de traitement par transformation de Fourier puisque celui-ci est plus large que le domaine effectivement enregistré.

Pour comparaison avec la largeur d'un élément

spectral, la demi-largeur Doppler d'une raie dans ces conditions est :

$$\gamma_D \approx 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

IV.6) PROJET DE MISE SOUS VIDE

Pour terminer la partie descriptive de l'interféromètre, signalons que nous avons commencé les travaux de mise sous vide. Les pièces de chaudronnerie qui constituent l'enceinte ont été assemblées et leur étanchéité vérifiée.

Elles ont une forme d'enveloppe cylindrique, de diamètre 1,25 mètres autour du chemin de roulement de l'oeil de chat mobile, et 1,8 mètres autour de la platine d'acier qui porte les éléments optiques. L'ensemble fait une longueur hors-tout de 14 mètres.

On a pu en utilisant une pompe à diffusion (CIT ALCATEL 6200), atteindre une pression de l'ordre de $5 \cdot 10^{-5}$ T.) rec
Aucune fuite n'a été constatée.

Pour ce qui est du chemin de roulement, il n'est rigidement couplé à l'enceinte qu'en un seul point, tous les autres points d'appui étant "flottant" grâce à des roulements à aiguilles. Ainsi l'enceinte peut se rétracter longitudinalement sous l'effet de la dépression, sans que les rails qui supportent l'oeil de chat mobile en soient

affectés.

L'ensemble de ces rails cylindriques est aligné et l'écart maximal à la rectitude est de 0,1 mm. Nous avons utilisé pour ces réglages, une cellule photo-électrique à quadrants et le faisceau d'un laser He-Ne.

L'armature de l'oeil de chat mobile est constituée par trois barres coniques afin d'opposer une inertie minimale aux impulsions de déplacement données au niveau du moteur électrodynamique. La longueur hors-tout de cet oeil de chat est de 1,5 mètres.

?

main?

La mise sous vide de l'interféromètre impose l'automatisation des réglages optiques de routine. Ainsi le parallélisme de la séparatrice et de la mélangeuse peut être assuré avec une erreur inférieure à 0,1 µm, grâce à des déplacements motorisés de la mélangeuse sur une course de ±50 µm. L'oeil de chat fixe, lui, est réglable en position suivant deux directions perpendiculaires, avec une erreur de 100 µm.

Le diaphragme d'entrée de l'interféromètre est motorisé : il peut se déplacer suivant trois axes perpendiculaires entre eux. Associé au télescope d'entrée, il doit former un faisceau infrarouge de 100 mm de diamètre dont la position pour la différence de marche maximale peut être définie à 100 µm près.

De même, les miroirs de renvoi (cf. III.2.a) sont sur des supports mécaniques réglables en orientation par

déformation élastique de l'acier, ceci afin de pouvoir atteindre des déplacements de l'ordre de dix microns avec un bras de levier de l'ordre de un mètre.

Pour ce qui est des réglages effectués visuellement, nous prévoyons d'utiliser le faisceau laser He-Ne qui servira à la mesure de la différence de marche, en prélevant une partie de son flux pour la diriger vers le diaphragme d'entrée. Devant celui-ci, on peut alors interposer au choix: un condenseur, un verre dépoli, une lentille divergente, en fonction de l'éclairage désiré.

L'ensemble des pièces mécaniques ou optiques escamotables et leur commande électronique fait l'objet actuellement d'une étude quant à leur automatisation.

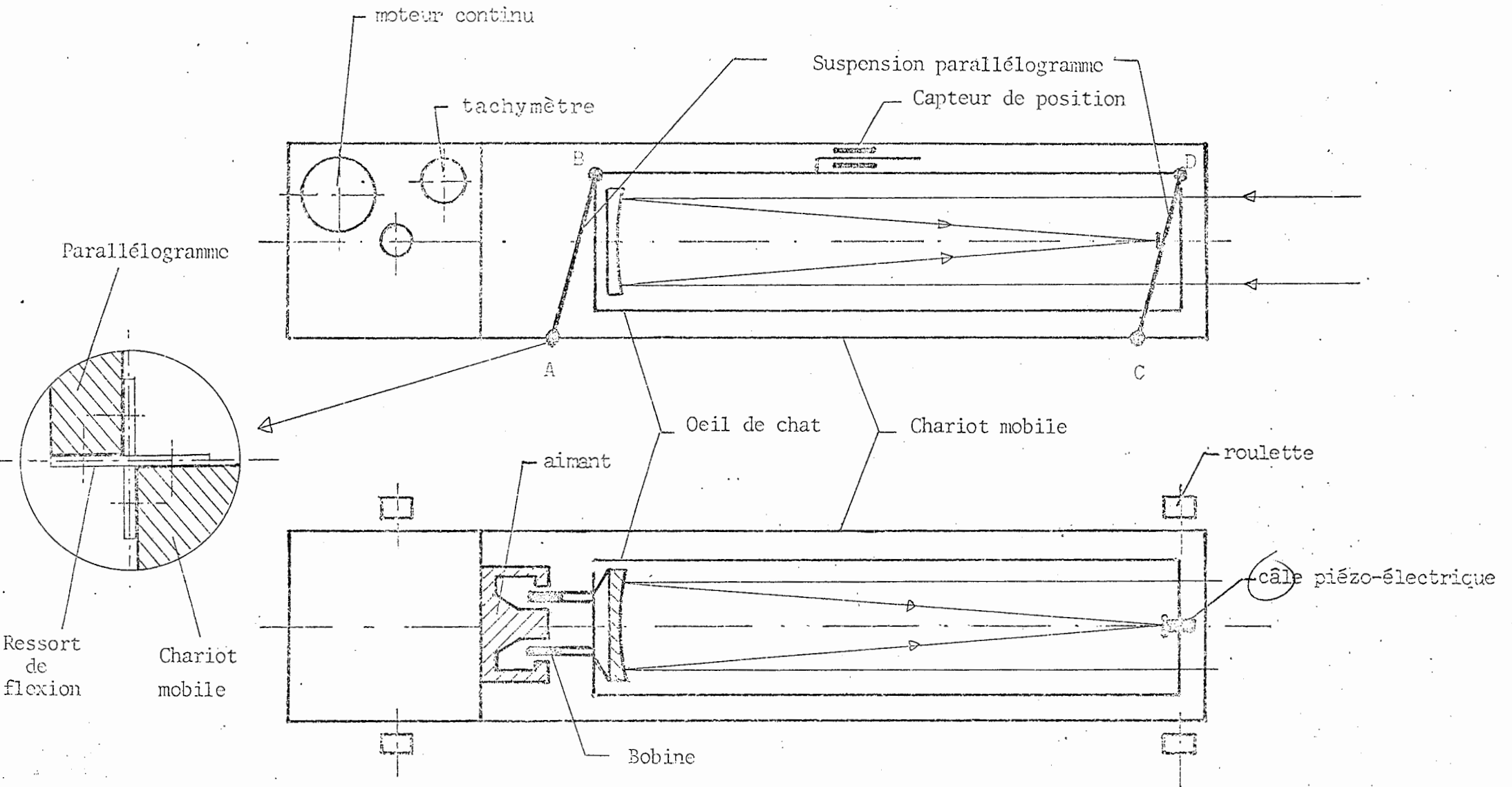


Figure IV -1 : Ensemble chariot mobile - Oeil de chat

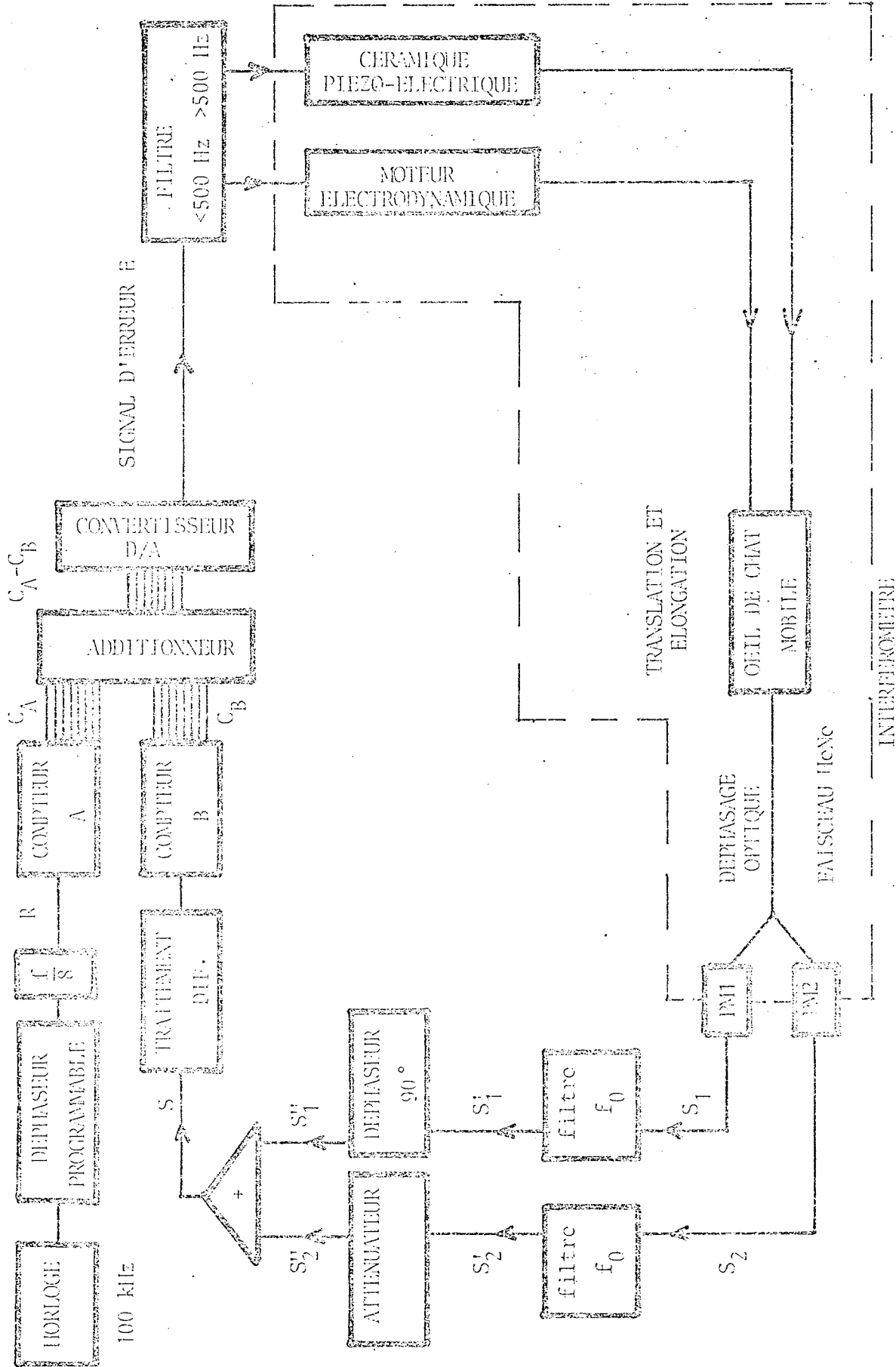
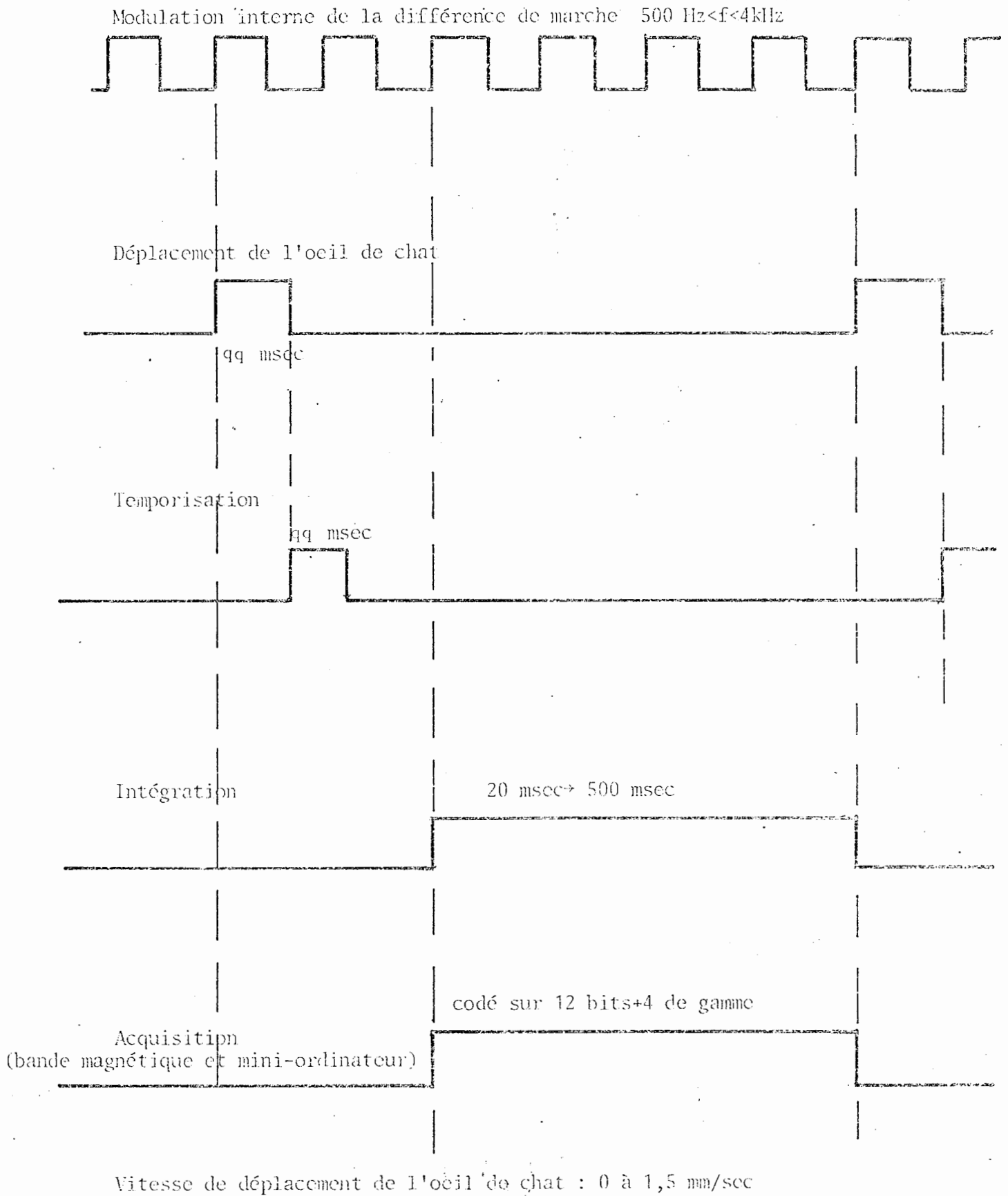


FIGURE IV-2: ASSERVISSEMENT DE DIFFERENCE DE MARCHIE

FIGURE IV-3 : Diagramme de temps
l'enregistrement d'un interférogramme



CHAPITRE V

STABILISATION ET PILOTAGE EN
NOMBRE D'ONDES DES DIODES LASER

Nous allons maintenant voir comment en utilisant l'interféromètre à grande différence de marche du laboratoire, nous avons pu non seulement mesurer, mais aussi contrôler le nombre d'ondes émis par une diode laser accordable [22].

Tout d'abord, nous décrivons le montage optique du dispositif qui permettra de réaliser des spectres par absorption du rayonnement des diodes, ensuite nous montrons le principe de la stabilisation en nombre d'ondes de ce rayonnement par asservissement à la différence de marche de l'interféromètre, enfin nous expliquons le principe de la commande externe de la diode, asservie à la commande de variation de la différence de marche.

V.1) MONTAGE OPTIQUE.

Le montage optique est représenté sur la figure V.1. Nous avons choisi de nous passer de monochromateur et de travailler dans des conditions de seuil d'effet laser pour les diodes. Ceci en raison de la simplicité du montage et surtout parce que l'efficacité du spectromètre à dispersion nulle (décrit en Annexe1) que nous nous proposons d'utiliser, est très insuffisante dans le domaine des nombres d'ondes étudiés ($\approx 2000 \text{ cm}^{-1}$).

Le faisceau issu de la diode laser est donc simplement focalisé par une lentille en fluorine L1 d'une

part sur le trou d'entrée de l'interféromètre, d'autre part sur un modulateur optique diapason Bulova.

Une lame séparatrice S1 (en KCl) assure le partage du flux lumineux en ces deux parties égales. A l'entrée de l'interféromètre, un miroir plan escamotable M permet de passer rapidement au fonctionnement en spectromètre à transformation de Fourier (cf. chapitre III) pour l'interféromètre.

Sur l'autre voie, le modulateur est solidaire d'un trou de filtrage destiné à former une tache lumineuse de bonne qualité et surtout modulée entièrement. Une seconde lame séparatrice S2, identique à S1, partage le flux et produit deux faisceaux aussi identiques que possible; sur chaque voie se trouvent une cuve d'absorption, un condenseur et un détecteur infrarouge.

La lentille L1 est de focale 30 mm, ouverte à $f/1$. Elle est sur un support mécanique assurant des translations suivant trois axes perpendiculaires. Les réglages demandant une très grande précision en raison des dimensions réduites de la surface émettrice de la diode, et du grandissement produit par L1 (≈ 30), nous avons dû étudier et réaliser au laboratoire un support mécanique sur lequel les réglages fins en translation sont obtenus par déformation élastique et différentielle de lames d'acier.

Les lames séparatrices S1 et S2 sont à faces planes (40 X 50) légèrement inclinées entre elles (30") et

traitées en semi-réfléchissantes sur une seule face.

La modulation du faisceau s'effectue à 2 kHz afin de faire une détection synchrone des signaux transmis par les cuves. Le trou de filtrage (\varnothing 1 mm) évite bien des problèmes de déphasage optique entre les deux détecteurs. Les cuves d'absorption sont aussi identiques que possible, leurs lames d'entrée et de sortie sont chacune à faces planes (à une frange près dans le visible) et légèrement inclinées entre elles (30"); les deux lames sont montées anti-parallèles. La longueur intérieure de chaque cuve est de $5.735 \pm 0,001$ cm pour l'étude qui nous a servi aux essais de stabilisation.

Les deux cuves sont reliées à un dispositif unique de pompage, remplissage et mesure de pression. Elles peuvent être isolées sélectivement de manière à faire le remplissage de gaz dans l'une ou dans l'autre, ceci afin de pouvoir étudier le quotient du signal correspondant au flux lumineux transmis par le gaz contenu dans la cuve d'absorption, soit I_t , par le signal correspondant à la voie de référence, soit I_0 . On s'affranchit ainsi de la transmission atmosphérique et de la variation de luminance de la diode au cours d'un balayage spectral.

Les deux détecteurs photovoltaïques InSb ($\varnothing 2mm$), refroidis à l'azote liquide, proviennent d'un même cristal et les condenseurs qui focalisent les faisceaux sont aussi identiques entre eux, ce sont des lentilles en KCl ($\varnothing 25,425$). Bien évidemment, les trajets optiques dans l'air entre S2 et

chaque détecteur sont identiques (à 1 % près).

Les signaux issus des détecteurs D1 et D2 sont traités par deux amplificateurs à détection synchrone identiques, accordés sur le même signal de référence issu du modulateur à 2 kHz. Ils sont ensuite divisés analogiquement.

Nous ne détaillerons pas le trajet du faisceau dans l'interféromètre (voir chapitre III), rappelons simplement que la différence de marche subit sa propre modulation interne, qui sert à la détection synchrone du signal infrarouge par le détecteur D3.

V.2) STABILISATION EN NOMBRE D'ONDES

V.2.a) Principe

Une méthode similaire à celle que nous présentons a déjà été mise en oeuvre pour la calibration et le contrôle de lasers accordables à colorants [23]. Il s'agit d'asservir la fréquence d'émission d'une source monochromatique, sur un état d'interférence produit par cette source, à travers un interféromètre du type Michelson.

Reprenons l'expression obtenue en sortie de notre interféromètre après démodulation (p 41) mais cette fois en supposant le rayonnement monochromatique, soit:

$$\begin{aligned}
 I(\delta, \tau) &= I_0 \cdot \left[\cos^2 [\pi \tau (\delta - A/2)] - \cos^2 [\pi \tau (\delta + A/2)] \right] \\
 &= I_0 \cdot \sin(\pi \tau A) \cdot \sin(2\pi \tau \delta)
 \end{aligned}$$

δ est la différence de marche moyenne de l'interféromètre, σ le nombre d'ondes de la source et A l'amplitude de modulation de la différence de marche.

Nous avons vu que A peut être choisie de manière à ce que la fonction de filtrage $\sin(\pi\sigma A)$ soit optimale pour une valeur σ donnée.

Par exemple pour

$$\sigma = 2000 \text{ cm}^{-1},$$

on choisira :

$$A = 2,5 \cdot 10^{-4} \text{ cm} \\ \approx 32 \times \lambda_0 / 8 \approx \frac{\lambda}{2}$$

$\lambda_0 = 6328 \text{ \AA}$, longueur d'onde du laser HeNe de référence, λ est la longueur d'onde d'émission de la diode.

On obtient:

$$\sin(\pi\sigma A) \approx 1$$

et

$$I(\delta, \sigma) = I_0 \cdot \sin(2\pi\sigma\delta)$$

Nous pouvons maintenant choisir la valeur de δ pour que, à σ donné :

$$I(\delta, \sigma) = 0$$

soit

$$2\pi\sigma\delta = k \cdot \pi \quad k \in \mathbb{N}$$

$$\delta = k/2\sigma \quad \text{ou } \delta = k \cdot \frac{\lambda}{2}$$

L'ordre d'interférence $p = \delta\sigma$ est donc entier ou demi-entier. Autour de ces conditions, on peut donc dire que la fluctuation d'intensité est:

$$dI(\sigma, \delta) = I_0 \cdot 2\pi \cdot \epsilon$$

ϵ étant l'écart de l'ordre d'interférence à la valeur p .

$$\epsilon = (\sigma + d\sigma) \cdot (\delta + d\delta) - \sigma \cdot \delta$$

Donc en négligeant le terme du second ordre $d\sigma \cdot d\delta$,

$$dI(\sigma, \delta) = 2\pi \cdot I_0 \cdot (\delta \cdot d\sigma + \sigma \cdot d\delta)$$

$d\delta$ représente l'erreur sur la différence de marche quelle que soit la valeur de celle-ci, soit environ $\pm 10 \text{ \AA}$, ceci en raison des caractéristiques de l'asservissement décrit au chapitre IV.

On retrouve à un facteur 2 près, la même équation que lors de l'étude de l'étalonnage par l'interféromètre à champ compensé, (cf II.1), mais cette fois, il est possible de transférer la stabilité en fréquence du laser de référence à la différence de marche de l'interféromètre puis au nombre d'ondes d'émission de la diode. Il suffit en effet pour cela de considérer le signal $dI(\sigma, \delta)$ comme le signal d'erreur de la boucle d'asservissement (fig. V.2). Il est injecté dans le module d'alimentation électrique de la diode et compensera directement en agissant sur le courant de polarisation, toute variation du nombre d'ondes qui le fait dévier de la valeur zéro.

V.2.b) Conditions de fonctionnement

Le temps de réponse vis-à-vis du courant de polarisation permet d'envisager un asservissement dont la fréquence de coupure doit pouvoir atteindre quelques kHz. Autrement dit, les fluctuations de nombre d'ondes de la diode intervenant dans des temps inférieurs à 1 msec ne pourront être corrigées.

Comme nous le voyons sur la figure V.3, le choix de la différence de marche intervient à la fois dans la sensibilité de l'asservissement et sur sa plage de réponse linéaire.

Dans la partie quasi-linéaire de la sinusoïde,

$$dI \approx I_0 \cdot 2\pi \cdot \delta \cdot d\sigma$$

en supposant $d\delta \approx 0$.

Une différence de marche trop importante entraînera un décrochement de l'asservissement et un passage "à la frange suivante", donc un saut en nombre d'ondes.

Nous présentons maintenant quelques enregistrements mettant en évidence dans un premier temps l'instabilité en fréquence des diodes, puis les possibilités de stabilisation.

Les figures V.4 et V.5 sont obtenues en sortie de l'interféromètre. La différence de marche est d'environ 1 mètre, les fluctuations du signal sont transcrites en unité de fréquence par comparaison avec la hauteur d'une frange d'interférence.



La figure V.4 montre l'évolution du signal pendant environ cinq minutes, lorsque la différence de marche est stabilisée mais pas la diode laser. Le nombre d'ondes désiré correspond à la ligne horizontale d'ordonnée ν_0 (fréquence f_0) et on remarque une variation lente atteignant $0,001 \text{ cm}^{-1}$ (30MHz), ainsi qu'une fluctuation rapide d'environ $7.10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ (2MHz) d'amplitude.

La figure V.5 montre à même échelle dans sa partie gauche que la figure V.4, la variation du signal issu de l'interféromètre lorsqu'on fait varier la différence de marche, ainsi que l'effet de la stabilisation du nombre d'ondes sur le flanc d'une frange. La partie droite de la figure est obtenue en multipliant le gain par 20, ce qui laisse apparaître une instabilité rapide d'amplitude environ égale à $3.10^{-6} \text{ cm}^{-1}$ (0,1MHz) qui n'est pas corrigée par l'asservissement.

Ces deux figures ne sont en fait pas très représentatives de la stabilité spectrale obtenue car elles représentent des signaux mesurés à l'intérieur de la boucle d'asservissement. On a néanmoins une démonstration de l'apport de la méthode.

Par contre la figure V.6 montre la stabilisation du nombre d'ondes après le balayage partiel d'une raie d'absorption, sur le signal produit par le diviseur analogique. L'instabilité résiduelle, par comparaison avec la pente de la raie au nombre d'ondes de la stabilisation,

peut être estimée à environ $0,0002 \text{ cm}^{-1}$, soit $1/20$ de la largeur Doppler de la raie ($\approx 0,004 \text{ cm}^{-1}$). Elle peut être corrigée aisément par l'intégration analogique au niveau de l'amplificateur. Il est par contre intéressant de la comparer aux fluctuations résiduelles des figures V.4 et V.5 et qui correspondent aux mêmes conditions expérimentales.

V.3) PILOTAGE EN NOMBRE D'ONDES DE L'EMISSION DES DIODES

V.3.a) Principe

Une fois que l'émission de la diode est asservie en nombre d'ondes sur un état d'interférence de son propre rayonnement à travers l'interféromètre, cet état correspondant à un ordre d'interférence demi-entier, toute variation commandée de la différence de marche entraînera une variation du nombre d'ondes de la diode telle que l'ordre d'interférence (p) soit conservé.

$$p = \sigma \cdot \delta = C \cdot \tau \rightarrow \frac{d\tau}{\tau} = - \frac{d\delta}{\delta}$$

La variation $d\delta$ entraîne la variation $d\tau$.

On peut donc, par la commande de variation de la différence de marche en mode pas à pas, décrite précédemment (IV.3), provoquer un balayage spectral contrôlé en mode pas

à pas du faisceau de la diode et ainsi, sur la voie optique complémentaire de celle de l'interféromètre, faire un spectre échantillonné avec un pas ajusté afin de répondre au problème étudié particulièrement.

La boucle d'asservissement et le système d'acquisition du spectre sont représentés sur la figure V.7, le schéma optique est décrit au paragraphe V.1. La grandeur d'entrée de la boucle est la commande de variation de la différence de marche δ de l'interféromètre, la grandeur de mesure est la variation de l'ordre d'interférence p .

Sur la voie du spectre, après la mise en forme du rapport I_t / I_0 , on utilise le système d'intégration, de digitalisation et d'acquisition sur mini-ordinateur, qui sert habituellement à l'enregistrement d'un interférogramme pour les spectres par transformation de Fourier sur 10000 échantillons (cf. chapitre IV).

La caractéristique essentielle de l'expérience est la synchronisation de tout l'ensemble sur un signal d'horloge unique, extérieur au système logique de mise en forme du signal d'erreur (fig.V.7). Cette horloge synchronise la modulation interne de la différence de marche de l'interféromètre, laquelle permet la détection synchrone du signal de mesure de la boucle d'asservissement, elle commande aussi le déclenchement d'impulsions au niveau du déphaseur programmable qui feront varier la différence de marche pas à pas; elle synchronise enfin la temporisation

lors de la stabilisation de l'oeil de chat mobile, l'intégration du signal mesuré sur la voie du spectre, et son acquisition sur le mini-ordinateur.

Ce système d'horloge unique a pour avantage de laisser libre l'opérateur d'interrompre le déplacement de l'oeil de chat mobile à tout moment puis de lui faire reprendre son mouvement dans un sens ou dans l'autre, sans jamais perdre un seul échantillon de mesure. Dans le cas de notre expérience, nous nous sommes servis de cette possibilité pour multiplier les balayages d'une raie d'absorption dans les deux sens, ν croissant et ν décroissant, afin de vérifier la reproductibilité de nos mesures, et surtout de conserver une différence de marche, donc un pas d'échantillonnage, pratiquement constante dans le domaine spectral étudié.

V.3.b) Conditions de fonctionnement

Notre but est d'enregistrer des spectres permettant de mesurer l'intensité de raies à faible pression donc ayant un profil Gaussien car élargies par effet Doppler, ainsi que les paramètres d'élargissement par collision, sur des raies dont le profil est décrit par une fonction de Voigt ou une fonction de Lorentz.

On choisit un pas d'échantillonnage du spectre étudié inférieur au dixième de la largeur à mi-hauteur du profil. Par exemple pour un gaz moléculaire à faible pression

(inférieure à 1 Torr) on a comme rapport de la largeur Doppler au nombre d'ondes :

$$\frac{2\gamma_D}{\sigma} \approx 2 \cdot 10^{-6}$$

et pour réaliser l'échantillonnage voulu, il faudra choisir une différence de marche au moins égale à $5 \cdot 10^6$ pas élémentaires (791 Å) sur l'interféromètre.

Le signal fourni par la diode permet de mesurer l'ordre d'interférence correspondant au nombre d'ondes émis avec une incertitude inférieure à 0,001 pour des temps d'intégration de l'ordre d'une fraction de seconde. Il en résulte qu'il est possible de mettre en évidence un décalage en nombre d'ondes:

$$d\sigma = \frac{0,001}{\delta}$$

soit $d\sigma = 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ pour $\delta = 1$ mètre

D'autre part, nous estimons que la différence de marche moyenne pour le faisceau infrarouge émis par la diode, est asservie à environ 100 Å près compte tenu de la turbulence atmosphérique dans l'interféromètre (le faisceau étant monochromatique, l'indice de l'air peut être considéré comme constant).

Le laser HeNe de référence, stabilisé sur son creux central d'accord interne possède une stabilité relative en fréquence:

$$\frac{d\nu}{\nu} \approx 10^{-8}$$

En conséquence, vers 2000 cm^{-1} pour la diode laser, avec une différence de marche de l'ordre d'un mètre, on obtient un échantillonnage dont l'incertitude est de quelques 10^{-5} cm^{-1} et un pas de l'ordre de $2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$, bien adapté à la largeur Doppler dans cette région spectrale, cette dernière étant d'environ $4 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ pour N_2O par exemple. La raie (pieds compris) sera échantillonnée sur au moins 100 valeurs. Grâce au codage en multiples de $\lambda_0/8$ de la variation élémentaire de la différence de marche (cf. IV.4), il est possible d'ajuster l'écart spectral entre deux échantillons en fonction du profil étudié.

Exemples :

La figure V.8 représente trois enregistrements d'une même raie avec trois pas d'échantillonnage différents. Il s'agit de la composante e-e du doublet P(22) de la bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ de N_2O (cf. Annexe 2), son nombre d'ondes est $2189,5143 \text{ cm}^{-1}$. La différence de marche de l'interféromètre est établie à

$$\delta = 79,1 \text{ cm} = 10^7 \cdot \delta_p$$

l'incrément élémentaire de différence de marche est

$$\frac{\lambda_0}{8} = 791 \text{ \AA}$$

On commande la variation de différence de marche par pas multiples de cet incrément élémentaire, soit :

$$\delta_p = m \cdot \frac{\lambda_0}{8}$$

Les trois enregistrements sont réalisés avec $m = 1$,

2 et 4. Seul le premier échantillonnage est réaliste pour une raie élargie par effet Doppler, les deux autres servant à l'illustration des possibilités de l'échantillonnage.

On a donc comme pas d'échantillonnage en nombre d'ondes:

$$\sigma_p = m \cdot \sigma \cdot 10^{-7}$$

Remarquons que pour un écart de 0,01 cm⁻¹ entre les nombres d'ondes initiaux et finaux, correspondant au balayage typique d'une raie Doppler, la variation du pas d'échantillonnage due au fait que la différence de marche ne soit pas constante, est très faible. Dans le cas de cet exemple elle est d'environ 10⁻⁹ cm⁻¹.

La figure V.9 représente un enregistrement de trois raies successives du spectre de N₂O. Il s'agit de la raie de P(24) de la bande froide ν_3 , suivie du doublet P(9) de la bande chaude $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$. On distingue l'échantillonnage du spectre, son pas est de 2.10⁻⁴ cm⁻¹. Le temps de réponse de l'enregistrement est de 0,1 sec.

Pour une raie "Voigt", en fonction de la pression totale dans la cuve d'absorption, donc de l'élargissement de la raie, (10 à 100 Torr soit 1 à 5 fois la largeur Doppler), on choisit le multiple de λ_0/B (de 2 à 5) pour avoir toujours environ 150 points d'étude par raie, le pas d'échantillonnage peut donc atteindre :

$$\sigma_p = \sigma \cdot 5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$$

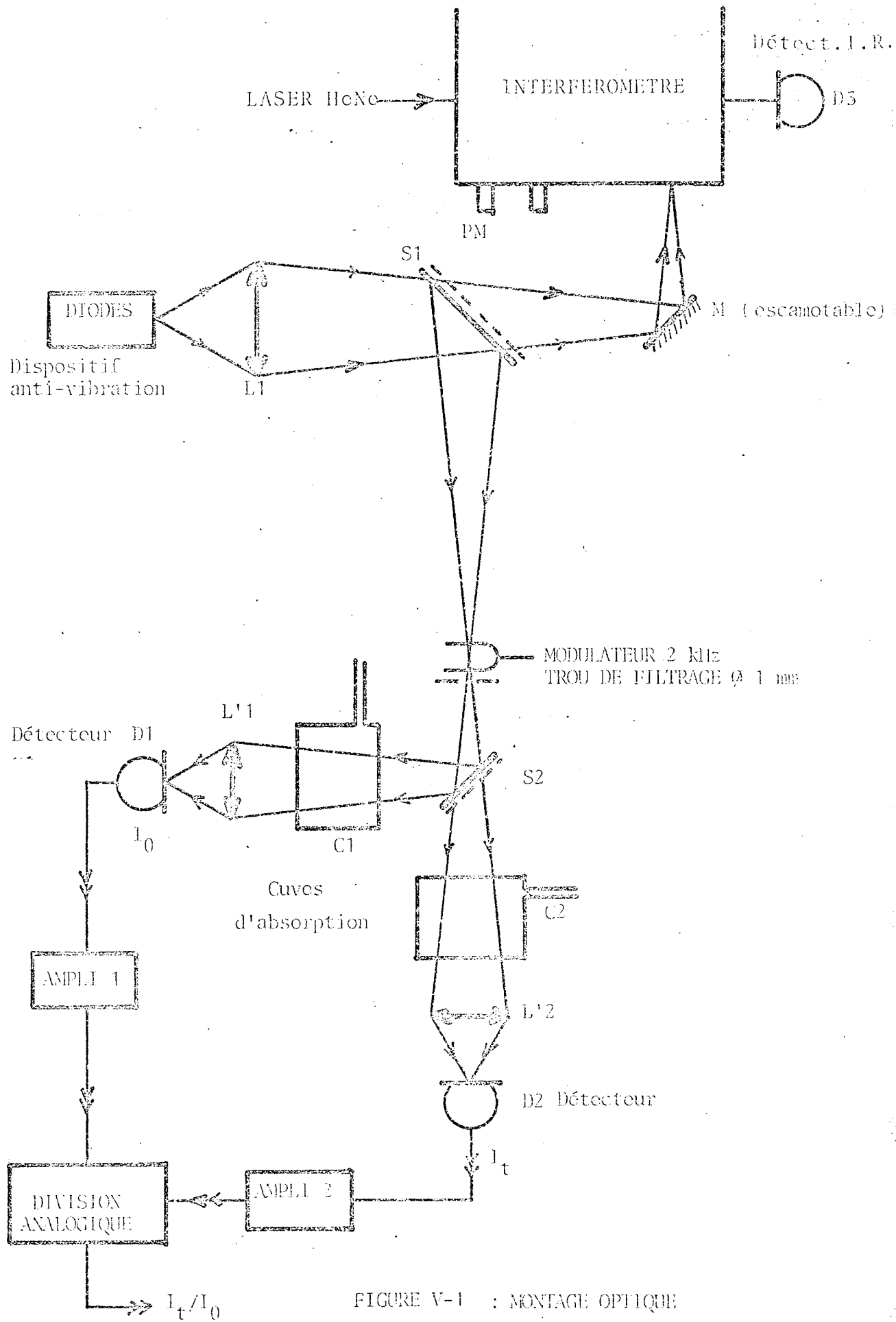


FIGURE V-1 : MONTAGE OPTIQUE
 SPECTROSCOPIE PAR DIODE LASER
 ASSERVIE EN NOMBRE D'ONDES.

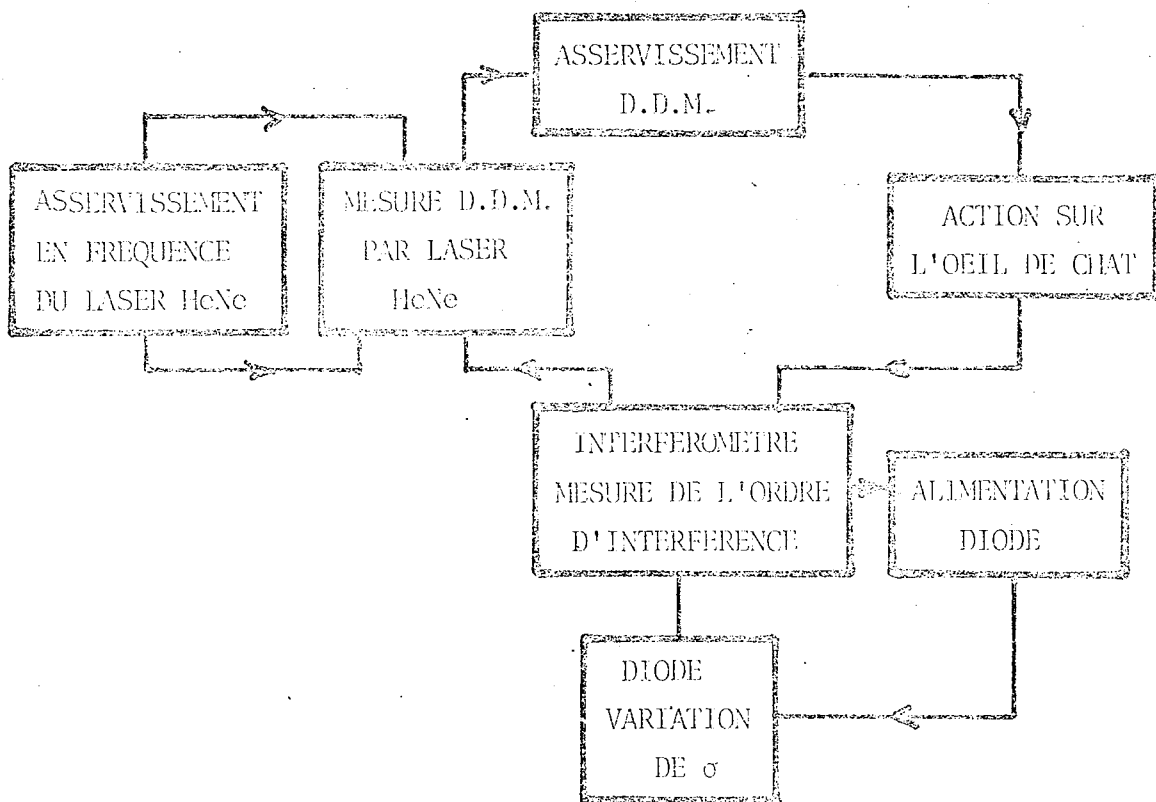


FIGURE V-2 : ASSERVISSEMENT EN σ DE L'EMISSION DE LA DIODE

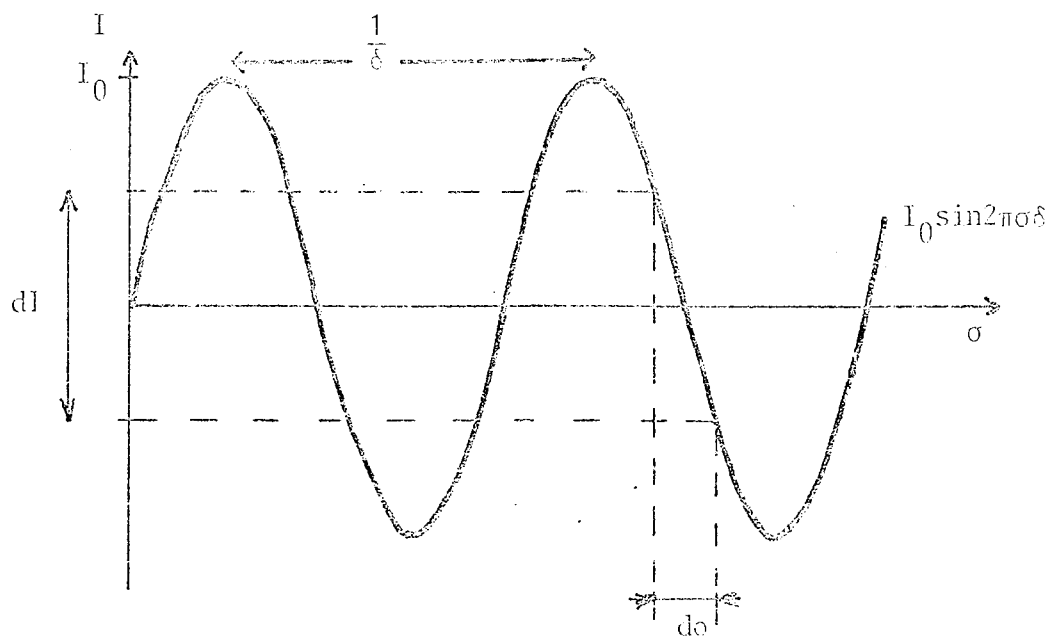


FIGURE V-3 : CHOIX DE LA DIFFERENCE DE MARCHE

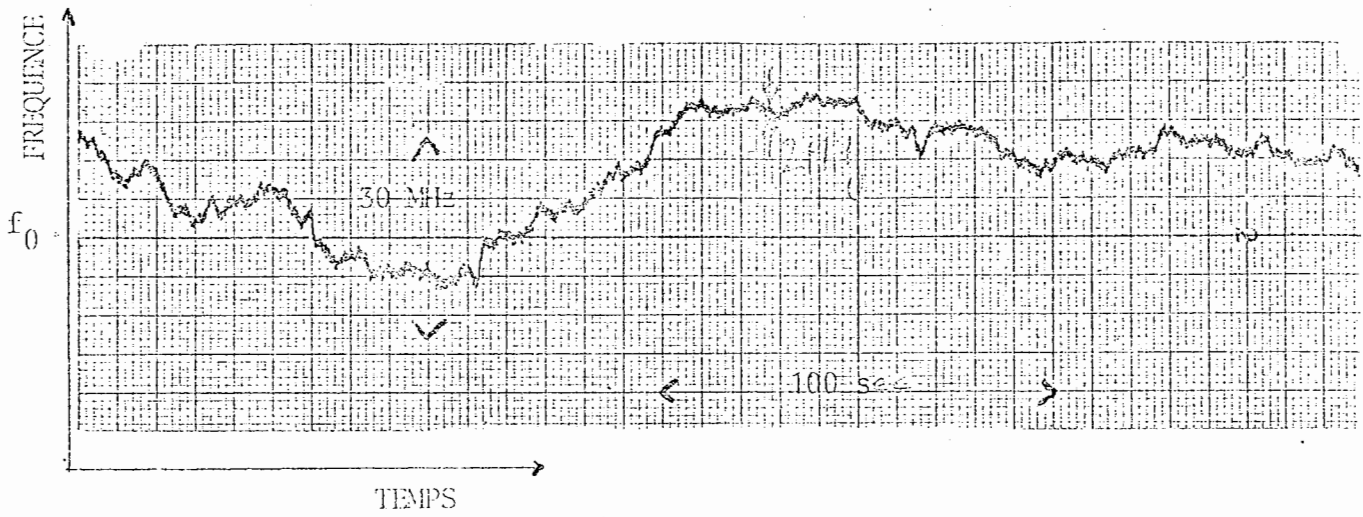
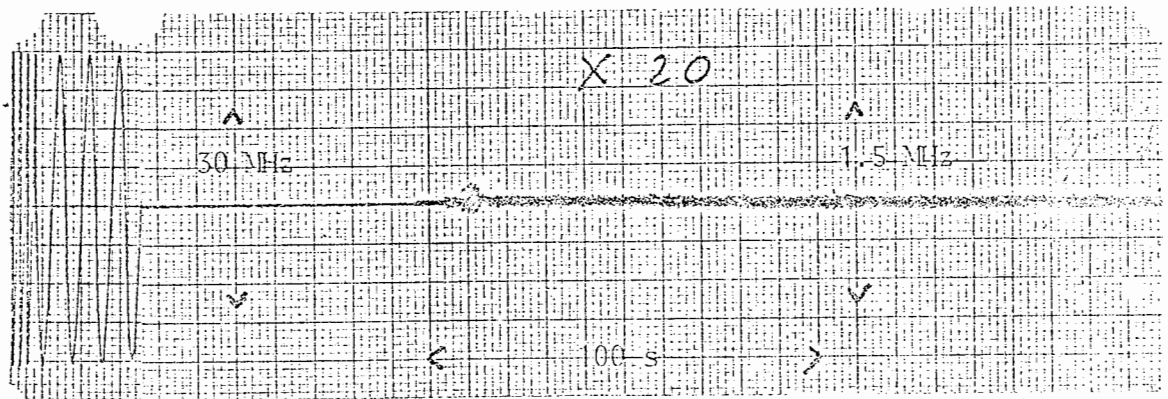


FIGURE V-4 : DERIVE LENTE EN FREQUENCE



————— MULTIPLICATION DE L'ECHELLE D'ORDONNEE

BALAYAGE EN DIFFERENCE DE MARCHIE

FIGURE V-5 : STABILISATION EN FREQUENCE

SIGNAL ISSU DE L'INTERFEROMETRE

0,0002 cm^{-1}

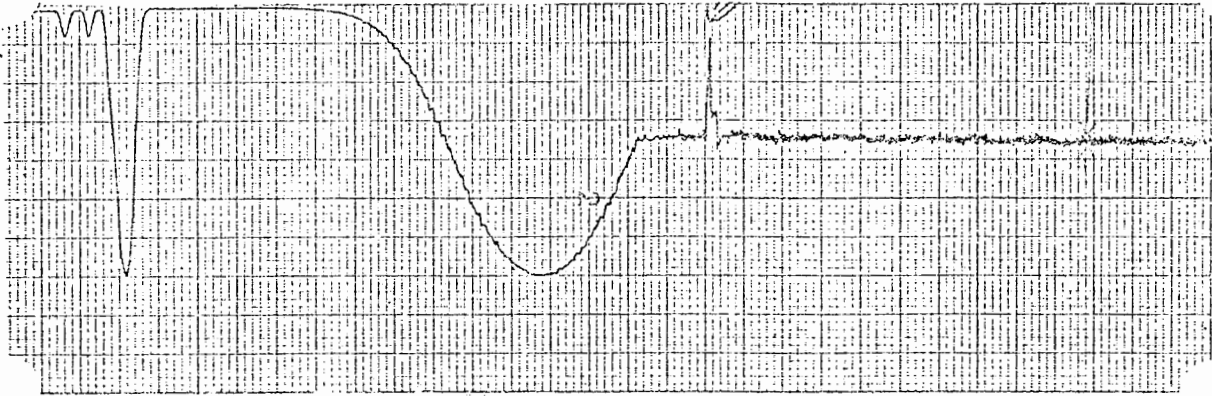
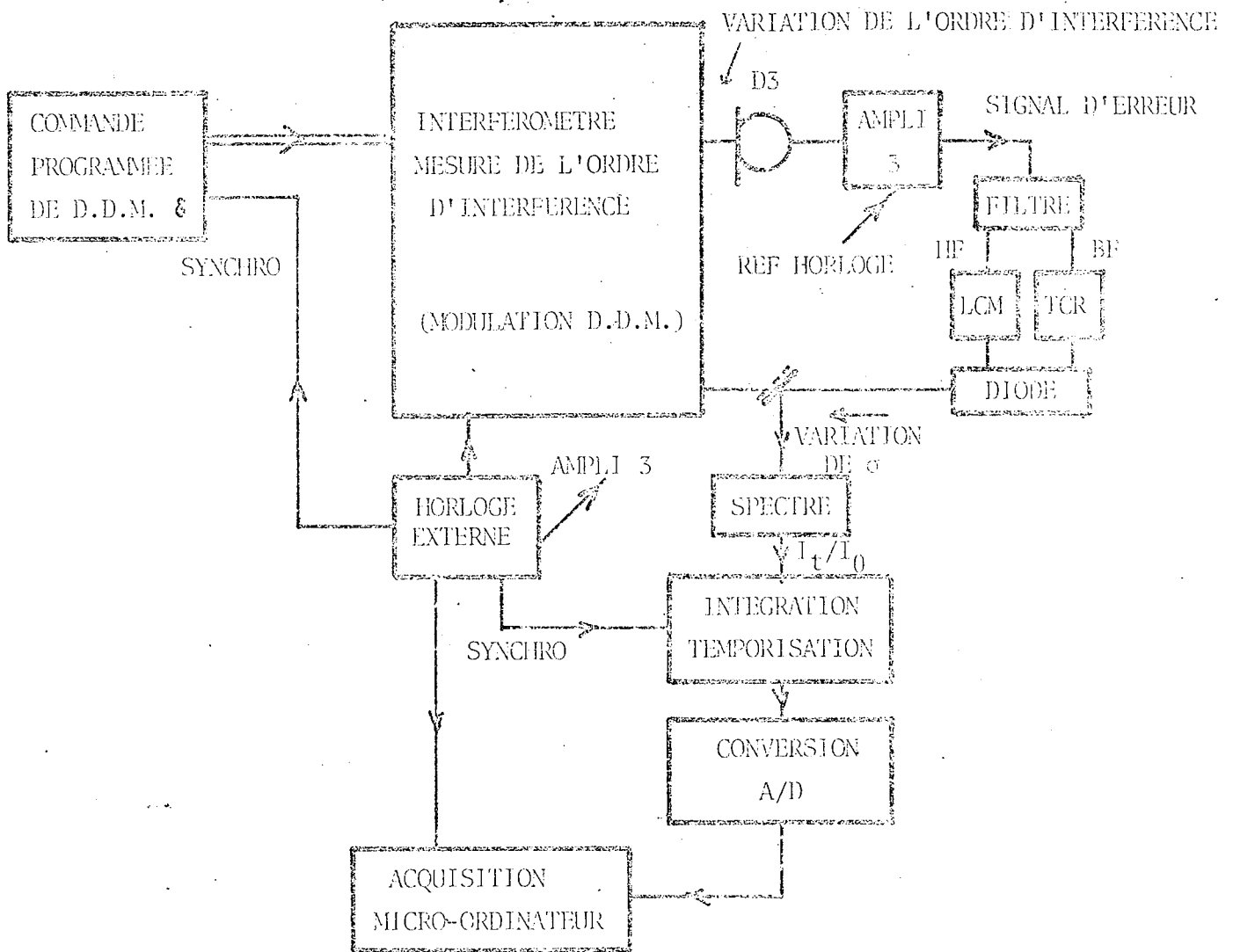


FIGURE V-6: STABILISATION EN FREQUENCE OBSERVEE SUR LE FLANC
D'UNE RAIE



LCM : Module de contrôle du courant

TCR : Régulation en température

FIGURE V-7: Asservissement et pilotage en fréquence du spectre

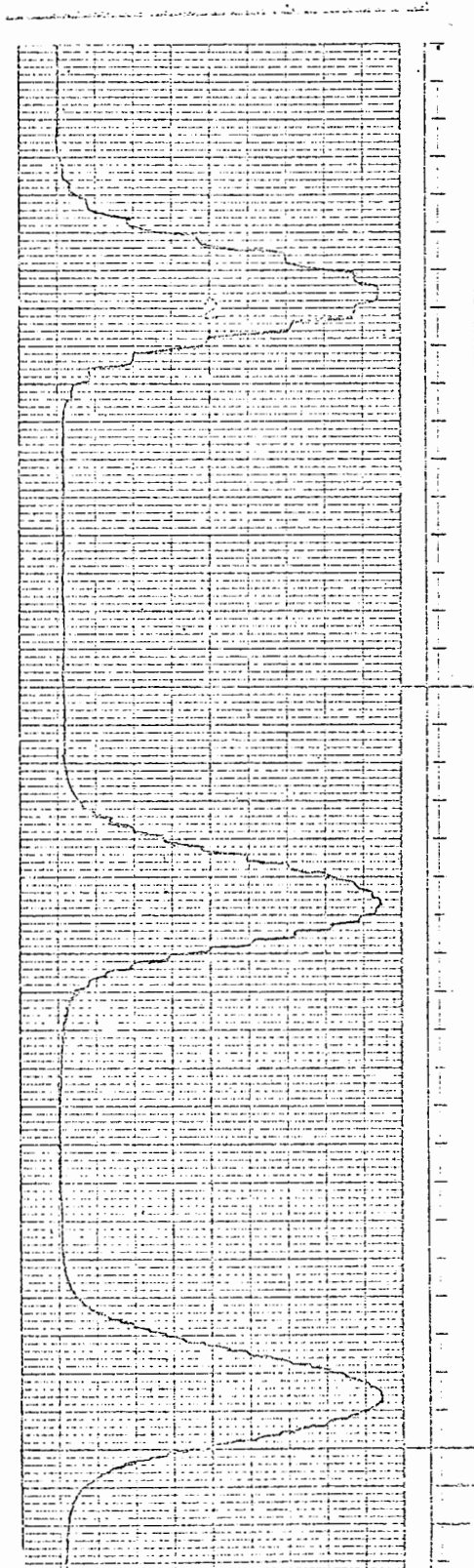


FIGURE V-8: P22 (c-c) DE LA BANDE $\nu_5 + \nu_2 - \nu_2$ DE N_2O ($2189,5145 \text{ cm}^{-1}$)

AVEC TROIS PAS D'ECHANTILLONNAGE DIFFERENTS

$$\delta_p = m \times 791 \text{ \AA} \quad (m=1, 2, 4) \quad \delta = 79,1 \text{ cm}$$

$$\sigma_p = m \times 2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

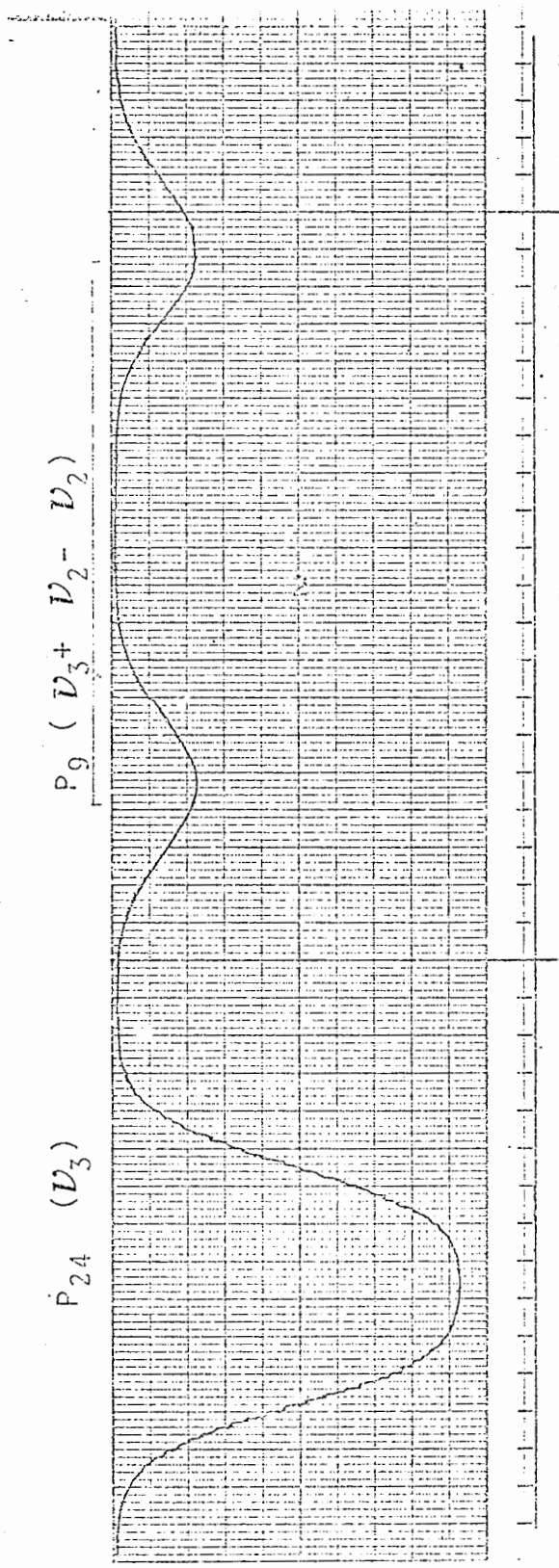


FIGURE V-9: TROIS RAIES SUCCESSIVES DE N_2O

$p = 0,147 \text{ T}$ $l = 5,755 \text{ cm}$

$\tau = 0,1 \text{ sec}$ $\sigma_p = 2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$

CHAPITRE VI

REALISATION DE SPECTRES PAR DIODE

LASER EN MODE ASSERVI

Nous avons vu (Chap.I) la manière classique de réaliser un spectre avec des diodes laser et les inconvénients des systèmes annexes de calibration en nombre d'ondes.

Après avoir décrit le principe de la stabilisation et du pilotage en nombre d'ondes des diodes laser, nous présentons maintenant la manière dont nous opérons, en associant les diodes laser et l'interféromètre à différence de marche variable du laboratoire.

VI.1) CHOIX DE LA MOLECULE ETUDIEE

Nous avons utilisé pour ces expériences une diode laser construite à base d'un cristal $\text{PbS}_{1-x}\text{Se}_x$. Elle est dotée d'une géométrie en bande (striped), son domaine spectral d'émission est important puisqu'il s'étend de 2180 cm^{-1} pour une température de 14 K, à 2280 cm^{-1} pour 50 K. Le flux émis varie entre 0,06 et 0,28 mW pour un fonctionnement de la diode au seuil de l'effet laser, c'est-à-dire pour des courants de polarisation compris entre $I_s = 39$ et $I_s = 800$ mA (I_s augmente avec la température de fonctionnement).

Ce domaine spectral de fonctionnement est bien adapté à l'étude des bandes froide ν_3 et chaude $\nu_2 + \nu_3 + \nu_2$ de la molécule N_2O (cf. Annexe 2) dont le spectre de vibration-rotation dans cette région présente, de plus, le

grand avantage d'être complètement étudié. Nous disposons ainsi de conditions expérimentales très favorables sur le plan de la vérification de nos mesures grâce à un spectre réalisé par transformation de Fourier entre 2000 et 2500 cm^{-1} , à une résolution de 0,006 cm^{-1} et pour un produit pression-longueur de gaz de 0,05 T.m. [24].

De plus, nous disposons aussi d'une compilation exhaustive des raies de N_2O [25], ce qui nous permet de contrôler si une raie est simple avant de l'étudier.

VI.2) CHOIX DES CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT

Comme nous avons décidé d'utiliser les diodes laser dans leurs conditions de seuil, il reste à établir la valeur de la température de fonctionnement correspondant à la raie sélectionnée pour l'étude.

Une modulation "dent de scie" du courant de polarisation I , au voisinage du courant de seuil I_s , permet une visualisation sur oscilloscope du spectre dans une bande spectrale correspondant au domaine d'émission d'un mode. Pratiquement, l'amplitude de cette modulation doit être relativement faible afin qu'elle corresponde à un fonctionnement monomode de la diode.

Il est facile alors de vérifier si l'on est proche du courant de seuil en remarquant le début de l'émission lumineuse. Il suffit maintenant d'ajuster la température de

fonctionnement T de la diode ainsi que I pour que les raies à étudier soient observées et que les valeurs de courant qui leur correspondent soient proches de I_s . Nous identifions les ensembles de raies mis ainsi en évidence avec le spectre de N_2O obtenu par transformation de Fourier.

En faisant varier la température T , et bien sûr en ajustant I_s , on voit apparaître les raies voisines du spectre, ce qui facilite l'identification. On se rend compte aussi que la diode n'émet pas dans certaines bandes spectrales, on peut ainsi observer des sauts de quelques cm^{-1} , ce qui interdit l'étude des raies concernées. Il arrive aussi que la diode émette plusieurs modes pour I très proche de I_s , on comprend l'intérêt de disposer de plus d'une diode émettant dans un domaine spectral donné. Le cryostat permet de refroidir quatre diodes en même temps et on passe de l'une à l'autre par simple commutation électrique et un ajustage de l'alignement optique.

Une fois la température de fonctionnement choisie, un premier test permet de vérifier que l'on n'a pas d'émission simultanée de plusieurs modes de la cavité relativement distants en nombre d'ondes (typiquement $\approx 0,5 \text{ cm}^{-1}$). En augmentant la pression du gaz dans la cuve d'absorption, on vérifie la saturation des raies et en mettant en fonction le modulateur optique (2 kHz), on s'assure qu'il n'y a pas de signal modulé "sous la raie". Si cela est le cas, une légère correction de la température de fonctionnement de la diode

remédie au problème.

On peut enfin établir la pression de gaz nécessaire à l'étude des raies et passer en détection synchrone avec une alimentation continue des diodes. On sait que sur le domaine d'étude, il n'y a qu'un mode principal émis ; il peut en effet subsister un autre mode beaucoup plus faible en intensité comme nous le verrons par la suite.

Ce premier test sur le fonctionnement de la diode dans une bande spectrale donnée, s'il n'est pas de toute confiance, s'avère néanmoins nécessaire car il permet une première vérification, particulièrement lorsque entre deux séances de travail il y a eu réchauffement puis refroidissement de l'enceinte cryogénique des diodes pour un pompage de maintenance (chaque semaine environ). En effet, il est bien rare à cette occasion de retrouver exactement les mêmes correspondances courant-température et nombre d'ondes.

VI.3) SPECTRE D'EMISSION PAR TRANSFORMATION DE FOURIER

Il est aussi bien entendu possible de réaliser un spectre d'émission de la diode par transformation de Fourier. Nous disposons d'une chaîne de programmes sur mini-ordinateur qui peut faire le traitement numérique sur les 10.000 premiers points de l'échantillonnage de

l'interférogramme. Ceci constitue un très bon critère pour l'identification d'une raie dans un spectre. Nous avons utilisé le signal transmis par la cuve d'absorption pour asservir la diode au nombre d'ondes de mi-hauteur d'une raie.

La variation algébrique dI du signal transmis par la cuve d'absorption autour d'une valeur moyenne I_0 , est considérée comme le signal d'erreur de ~~de~~ la boucle d'asservissement et est injecté dans le module de commande de la diode en courant de polarisation (LDM).

La partie du faisceau qui est fournie à l'interféromètre sert à faire le spectre par transformation de Fourier. Le nombre de points pouvant être acquis en mémoire du mini-ordinateur étant limité par la taille des tableaux du système informatique de traitement, la résolution du spectre sera évidemment plus élevée que la largeur spectrale à mi-hauteur d'une raie d'émission laser.

Pour un enregistrement de 10.000 points d'interférogramme, nous choisissons le pas de variation de différence de marche maximal soit :

$$\delta = 999 \cdot \frac{\lambda_0}{8} = 79 \mu\text{m}$$

Ce pas nous permettant l'étude d'un domaine spectral largement surabondant de:

$$\Delta\sigma = \frac{1}{2\delta p} = 63 \text{ cm}^{-1}$$

On peut ainsi obtenir une différence de marche maximale :

$$\delta_{\text{max}} = 79 \text{ cm}$$

Soit une résolution :

$$\sigma_r = 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

Compte tenu de la largeur typique d'émission d'une diode laser, on n'observera, après transformation de Fourier inverse sur le mini-ordinateur, que la fonction d'appareil de l'interféromètre mais on aura une vérification du nombre d'ondes émis par la diode et de l'absence de modes longitudinaux distants de plus de 10^{-2} cm^{-1} .

VI.4) ASSERVISSEMENT DES DIODES ET SPECTRE D'ABSORPTION

Dès que la différence de marche a atteint la valeur désirée pour l'asservissement (79,1 cm soit 10^7 incréments élémentaires repérés sur un compteur), le nombre d'ondes émis par la diode est ajusté pour que le signal issu de la détection synchrone en sortie de l'interféromètre :

$$I = I_0 \sin(2\pi\sigma\delta)$$

soit nul en moyenne. Le signal formé des fluctuations de I est alors injecté en contre-réaction

dans le module d'alimentation de la diode (cf. chap. V), il s'ajoute algébriquement au courant de polarisation. Il reste à superposer aux corrections ainsi effectuées un balayage lent du nombre d'ondes qui compense l'erreur de trainage de l'asservissement; pour cela, nous avons travaillé suivant deux méthodes.

VI.4.a) Balayage du courant de polarisation

Le gain sur le signal de contre-réaction n'étant pas infini à fréquence nulle, on maintient le signal d'erreur moyen nul en créant un balayage lent du courant de polarisation grâce à une fonction interne du LCM, tandis que les fluctuations indésirables sont corrigées par l'asservissement avec une atténuation à 6dB/octave dont la fréquence de coupure est de quelques Hertz.

La température de fonctionnement de la diode est stabilisée par son boîtier de régulation (TCR) et reste constante pendant le spectre.

Cette méthode de travail présente des inconvénients. En effet, lorsque le courant de polarisation balaye le domaine nécessaire pour l'enregistrement d'une raie, le signal détecté varie d'un facteur 10 environ, ceci en raison de l'augmentation du flux émis par la diode avec le courant de polarisation. Le diviseur analogique que nous utilisons pour mesurer le quotient du signal transmis par la cuve d'absorption, par le signal de la voie de référence,

travaille donc dans des conditions nécessitant une grande dynamique. Le manque de précision de cet appareil produit une ligne de base qui n'est pas droite (quelques pour cent de variation).

La solution serait d'acquérir alternativement sur le mini-ordinateur le signal transmis par la cuve et le signal de référence, le tout pendant la durée de stationnement de la différence de marche, ou autrement dit la stabilisation du nombre d'ondes, puis de faire ultérieurement une division informatique.

Mais il reste un second inconvénient : il est possible que les conditions de seuil ne soient pas conservées au cours du spectre et qu'un fonctionnement multimode débute lorsque le courant de polarisation augmente.

Ces problèmes nous ont amené à développer une autre méthode beaucoup plus satisfaisante.

VI.4.b) Balayage en température.

Nous avons remarqué que pour une valeur donnée du courant de polarisation, au voisinage du seuil laser, on s'écarte beaucoup moins rapidement du fonctionnement monomode de la diode en modifiant la température de fonctionnement que lorsque la température reste fixe et que l'on fait varier le courant, ceci pour une même variation du nombre d'ondes émis.

Le principe de la méthode est donc de faire varier lentement la température en se servant d'une commande externe sous forme de rampe, tout en corrigeant les fluctuations plus rapides et indésirables du nombre d'ondes émis en agissant sur le courant de polarisation. L'asservissement en température du boîtier de régulation (TCR) ayant une fréquence de coupure faible et une pente d'atténuation brutale, il nous a été impossible de coupler les deux paramètres T et I dans la boucle d'asservissement. Le signal d'erreur sur l'ordre d'interférence est toujours envoyé dans le LCM par la prise de commande externe, mais cette fois on compense l'erreur de trainage par un balayage en température en faisant varier la valeur de référence de son boîtier de régulation. A cet effet, nous avons utilisé la fonction "rampe" du LCM, laquelle est de très bonne qualité en la détournant de son utilisation classique pour l'injecter dans le boîtier de régulation en température (TCR), au niveau du potentiomètre définissant la valeur de la température désirée. Avec cette méthode, le courant de polarisation moyen ne varie pratiquement pas pendant l'étude d'une raie, de même pour le flux émis par la diode.

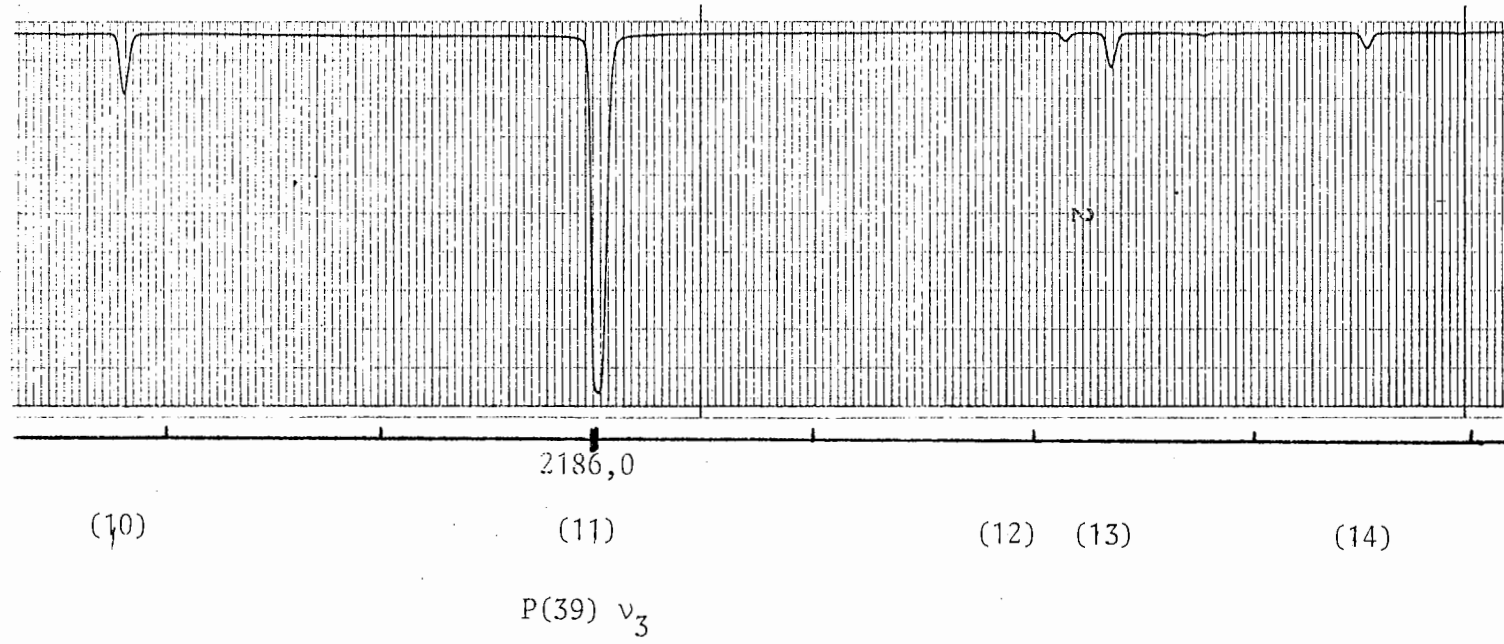
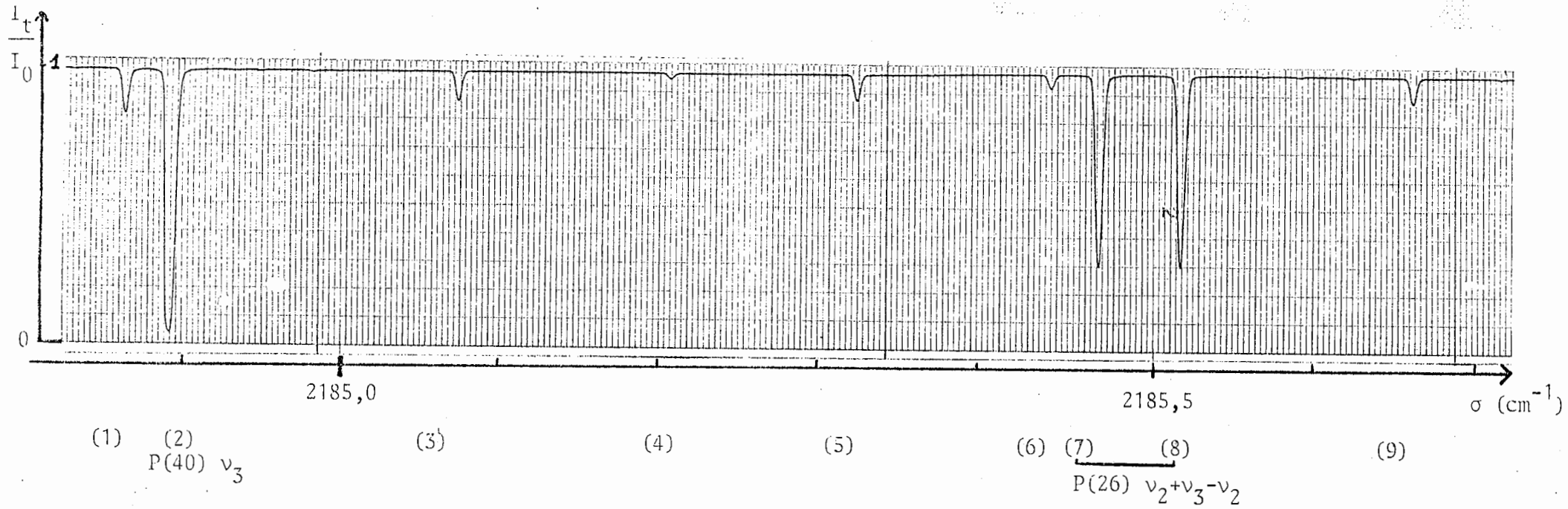
Le diviseur analogique travaille avec des valeurs de lignes de base uniformes, et le diode reste en fonctionnement monomode dans un domaine spectral beaucoup plus important. Il est alors possible d'explorer la durée de vie complète d'un mode, soit de l'ordre de 1 cm^{-1} , donc plus d'un ordre

de grandeur supérieur au domaine qu'il est possible d'explorer en régime monomode par un balayage du courant seul.

Nous avons pu réaliser un spectre de N_2O continu sur $1,6\text{cm}^{-1}$ en créant une élévation de température de 0,2 K (vers 37 K) tandis que le courant de polarisation n'a varié que de 12 mA (fig. VI.1). Quatorze raies d'absorption correspondant à différents isotopes de la molécule ont été identifiées. on remarquera la qualité du rapport du signal au bruit de ce spectre.

Notre but n'étant pas de réaliser des spectres sur des domaines étendus, cette méthode nous paraît intéressante lorsqu'on désire étudier des raies voisines successivement:

on peut se décaler dans le spectre sans perdre le bénéfice de l'asservissement et étudier différentes raies dans les mêmes conditions de fonctionnement ^{POU} par la diode. Lorsqu'on désire étudier des raies fortement élargies par collision (pour des pressions de quelques dizièmes d'atmosphère), tel que le profil soit Lorentzien, on dispose ainsi facilement du balayage spectral continu nécessaire de l'ordre de 1 cm^{-1} . Par contre, si l'on veut garder le même pas d'échantillonnage entre deux spectres, il faut lorsqu'on change de raie, couper l'asservissement, garder la même différence de marche pour l'interféromètre et modifier les conditions de fonctionnement de la diode.



FIGUREVI -1
 Spectre de N_2O obtenu
 par diode laser asser-
 vie en nombre d'ondes
 pression : 0,850 T
 longueur de cuve:5,735 cm
 température : 22 °C
 Identification des raies : page
 suivante

ν (cm^{-1})	isotope N N O	Transition de vibration- rotation				
(1) 2184, 8687	14 14 16	(02 ² 1) ← (02 ² 0)	P(12)			
(2) 2184, 8987	14 14 16	(00 ⁰ 1) ← (00 ⁰ 0)	P(40)			
(3) 2185, 0750	15 14 16	(00 ⁰ 1) ← (00 ⁰ 0)	P(19)			
(4) 2185, 2078	14 14 18	(00 ⁰ 1) ← (00 ⁰ 0)	P(35)			
(5) 2185, 3237	14 14 16	(02 ⁰ 1) ← (02 ⁰ 0)	P(12)			
(6) 2185, 4447	14 14 16	(10 ⁰ 1) ← (10 ⁰ 0)	P(12)			
(7) 2185, 4749	14 14 16	(01 ¹ 1) ← (01 ¹ 0)	P(26) e-e			
(8) 2185, 5256	14 14 16	(01 ¹ 1) ← (01 ¹ 0)	P(26) f-f			
(9) 2185, 6714	14 15 16	(00 ⁰ 1) ← (00 ⁰ 0)	R(9)			
(10) 2185, 7831	14 14 16	(02 ² 1) ← (02 ² 0)	P(11)			
(11) 2186, 0024	14 14 16	(00 ⁰ 1) ← (00 ⁰ 0)	P(39)			
(12) 2186, 2161	14 14 18	(00 ⁰ 1) ← (00 ⁰ 0)	P(34)			
(13) 2186, 2374	14 14 16	(02 ⁰ 1) ← (02 ⁰ 0)	P(11)			
(14) 2186, 3553	14 14 16	(10 ⁰ 1) ← (10 ⁰ 0)	P(11)			

CHAPITRE VII

CHAINE D'ACQUISITION ET DE TRAITEMENT
DES DONNEES

VII.1) INTRODUCTION - OBJECTIFS

La chaîne de programme que nous avons développé doit être un outil de travail rapide et efficace pour l'opérateur qui dépouille les spectres obtenus avec les diodes laser en mode pas à pas asservi. Il doit être possible d'emmagasiner une série d'enregistrements et de les traiter immédiatement car la partie purement instrumentale du travail reste délicate et une vérification rapide des mesures est bien utile.

Rappelons que la finalité principale de notre système de spectrométrie par diode laser est la mesure des intensités de raies en élargissement Doppler-Fizeau ainsi que la mesure de leurs paramètres d'élargissement pour des pressions peu élevées.

Dans cette partie nous rappellerons quelques propriétés sur les raies d'absorption, particulièrement sur la définition des largeurs équivalentes et leur développements en série en fonction de l'intensité, qui est utilisé en informatique. Puis nous présenterons la chaîne informatique d'acquisition et de traitement des données, en expliquant son fonctionnement et en présentant ses possibilités.

VII.2) RAPPELS SUR LES RAIES D'ABSORPTION

Rappelons les lois d'absorption du rayonnement par les gaz, et les expressions analytiques du profil et de la forme des raies d'absorption.

VII.2.a) Lois d'absorption

Si une couche d'épaisseur dL de gaz à la pression p est traversée par un rayonnement de nombre d'onde ν et de flux par unité de surface perpendiculaire au rayonnement $I(\nu)$, ce flux varie de la quantité dI donnée par la loi de Bouguer et Lambert :

$$dI(\nu) = -I(\nu) \cdot k(\nu, p) \cdot dL \quad (7.1)$$

Lorsque dL est donné en cm, $k(\nu, p)$ s'exprime en cm^{-1}

Intégrons l'équation de 0 à L , il vient:

$$K(\nu, p) = \frac{1}{L} \cdot \text{Log} \left[\frac{I_0(\nu)}{I_t(\nu)} \right] \quad (7.2)$$

qui est l'expression du coefficient d'absorption au nombre d'ondes ν , I_0 étant le flux incident, I_t le flux transmis.

On en déduit alors pour une raie centrée au nombre d'ondes ν l'expression du "coefficient d'absorption intégré" :

$$S = \int_0^{\infty} K(\nu, p) \cdot d\nu$$

Le "profil de la raie" est défini par la fonction décrivant la variation de $K(\sigma, p)$ avec σ , il dépend donc de la pression. Lorsque celle-ci n'est pas trop élevée, on peut écrire :

$$S = S^0 \times p$$

qui exprime la proportionnalité du coefficient d'absorption avec la concentration.

S^0 est l'intensité de la raie et s'exprime en $\text{cm}^{-2}/\text{atm}$, si la pression est en atmosphère.

VII.2.b) Elargissement des raies

On distingue trois causes d'élargissement de raies, se divisant en deux catégories : deux élargissements homogènes et un élargissement hétérogène.

Le premier élargissement homogène est lié à la durée de vie radiative, il donne à la raie une forme Lorentzienne, dont la largeur à mi-hauteur, dans la partie infrarouge du spectre, est de l'ordre de 10^{-7} cm^{-1} .

Le second élargissement homogène est dû aux collisions entre les molécules du gaz. Une molécule absorbe le rayonnement au nombre d'ondes σ , si elle subit une collision, les niveaux d'énergie changent et l'absorption est interrompue. Elle reprend après la collision au même nombre d'ondes σ mais avec une phase sans relation avec la phase initiale. Il en résulte une apparente dispersion spectrale de l'absorption et le profil de raie prend alors

une forme Lorentzienne. Le coefficient d'absorption a alors pour expression :

$$K_L(\sigma, p) = \frac{S}{\pi} \frac{\gamma_L}{(\sigma - \sigma_0)^2 + \gamma_L^2} \quad (7.3)$$

γ_L étant proportionnel à la fréquence des collisions donc à la pression p du gaz dans la mesure où celle-ci n'est pas trop élevée. On écrit :

$$\gamma_L = \gamma^0 \cdot p$$

γ^0 est le "paramètre d'élargissement", il s'exprime en $\text{cm}^{-1} \text{atm}^{-1}$

Remarque : pour un mélange de différents gaz i à la pression partielle p_i ,

$$\gamma_L = \sum_i \gamma_i^0 p_i$$

La dernière cause d'élargissement, dit "inhomogène" est l'effet Doppler. En effet, des molécules dont les projections des vitesses sur la direction du rayonnement incident sont différentes, absorbent le rayonnement à des nombres d'ondes différents dans le référentiel fixe du laboratoire.

On observe donc l'absorption de molécules appartenant à une certaine classe de vitesses seulement. Cette discrimination provoque un élargissement de la raie dépendant de la répartition des vitesses des différentes

molécules de gaz, laquelle pour un gaz en équilibre thermodynamique, obéit à la loi de distribution de Maxwell-Boltzman.

La fonction analytique du profil d'une raie élargie par l'effet Doppler-Fizeau est une fonction de Gauss :

$$K_D(\sigma, p) = \left[\frac{\text{Log}2}{\pi} \right]^{\frac{1}{2}} \frac{S^0 p}{\gamma_D} \exp \left[-\text{Log}2 \cdot \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\gamma_D} \right)^2 \right] \quad (7.4)$$

γ_D est la demi-largeur Doppler :

$$\gamma_D = 3,58 \cdot 10^{-7} \cdot \sigma_0 \cdot \sqrt{\frac{T}{M}} \quad (7.5)$$

σ_0 nombre d'ondes au sommet de la raie, T température absolue, M masse de la molécule.

Si l'on compare quantitativement les trois causes d'élargissement des raies, on s'aperçoit qu'en spectroscopie dite "classique", c'est-à-dire lorsqu'on ne sélectionne pas une certaine classe de molécules comme par exemple lors de l'utilisation de jets moléculaires, ou de l'absorption saturée, l'élargissement lié à la durée de vie radiative est parfaitement négligeable car la largeur de la raie est toujours limitée inférieurement par l'effet Doppler.

Pour des pressions suffisamment faibles, on peut rendre cette cause d'élargissement prépondérante devant l'élargissement par collision. Pour une pression telle que ces deux causes d'élargissement sont à considérer, on représente le coefficient d'absorption par une fonction de

Voigt égale au produit de convolution d'une Gaussienne par une Lorentzienne. Soit :

$$K_V(\sigma, \rho) = K_D(\sigma, \rho) \cdot \frac{a}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-y^2)}{a^2 + (t-y)^2} dy \quad (7.6)$$

avec $a = \frac{\gamma_L}{\gamma_D} (\text{Log } 2)^{\frac{1}{2}}$ et $t = \frac{\sigma - \sigma'}{\gamma_D} (\text{Log } 2)^{\frac{1}{2}}$

VII.2.c) Largeur équivalente - Mesure d'intensité

On appelle largeur équivalente d'une raie (laquelle doit être isolée) la surface W comprise entre la courbe enregistrée et la courbe d'absorption nulle. Lorsqu'elle s'exprime en cm^{-1} , elle est égale à la fraction d'énergie absorbée lors de la transition correspondant à la raie, ce qui signifie en particulier qu'elle ne dépend pas de la fonction d'appareil du dispositif qui a servi à la réalisation du spectre.

On a donc :

$$W = \int_0^{\infty} \left[1 - \frac{I_t(\sigma)}{I_0(\sigma)} \right] d\sigma$$

où $I_0(\sigma)$ et $I_t(\sigma)$ sont respectivement les flux par unité de surface incident et transmis au niveau de la cuve

d'absorption contenant le gaz.

On peut calculer l'intensité S^0 d'une raie à partir de sa largeur équivalente W en utilisant le développement limité de W en fonction de S^0 , c'est la méthode des courbes de croissance [26] dont nous nous sommes servis sous forme de programme informatique. D'après l'équation (7.2), la largeur équivalente devient :

$$W = \int_0^{\infty} \left[1 - \exp(-K(r,p) \cdot L) \right] \cdot dr$$

Il faut maintenant étudier les différents types de profils qui se présentent.

* Largeur équivalente d'une raie Doppler.

En utilisant le développement en série entière de rayon de convergence infini, de la fonction exponentielle et en prenant l'expression du profil K_D d'une raie Doppler (7.4) on aboutit [27] au développement de la largeur équivalente d'une raie Doppler en fonction de l'intensité S^0

$$W_D = \int_0^{\infty} \left[1 - \exp(-K_D(r,p) \cdot L) \right] \cdot dr$$

$$= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(n+1)! \cdot (n+1)} \cdot \frac{(S^0 p l)^{n+1}}{\gamma_D^n} \cdot \left[\frac{\text{Log} 2}{\pi} \right]^{n/2}$$

dont la convergence est d'autant plus rapide que

$\frac{S^0_{pL}}{\gamma_D}$ est faible.

On procède par approximations successives pour obtenir S^0 à partir de W_D , γ_D étant connu par le calcul (7.5).

* Largeur équivalente d'une raie Lorentz

Dans le cas d'une raie élargie par collisions ayant un profil Lorentzien, la largeur équivalente devient [28], en prenant l'expression de K_L donnée précédemment (7.3) :

$$W_L = \int_0^\infty \left[1 - \exp(-K_L(\sigma, p) \cdot L) \right] \cdot d\sigma$$

$$= 2\pi \gamma_L \cdot x \cdot \exp(-x) \cdot | J_0(ix) - i J_1(ix) |$$

J_0 et J_1 sont des fonctions de Bessel et

$$x = \frac{S^0_{pL}}{2\pi \cdot \gamma_L}$$

En développant en série les fonctions J_0 et J_1 [29] il

vient :

$$W_L = 2\pi \gamma_L \cdot x \cdot \exp(-x) \cdot \sum_{n=0}^{\infty} \frac{x^{2n}}{4^n \cdot (n!)^2} + \frac{x^{2n+1}}{2^{2n+1} \cdot n! \cdot (n+1)!}$$

* Largeur équivalente d'une raie Voigt

Lorsque les deux causes d'élargissement, effet Doppler et collisions, sont à considérer, comme il n'existe pas d'expression analytique simple exprimant la largeur équivalente W_V en fonction de l'intensité S^0 , on utilise généralement une tabulation publiée [30] de W_V/γ_D en fonction de $\frac{S^0 p_L}{\gamma_D}$ et $\frac{\gamma_L}{\gamma_D}$ pour calculer S^0 à partir de W_V .

VII.3) LA CHAÎNE D'ACQUISITION ET DE TRAITEMENT DES DONNÉES

VII.3.a) Acquisition

Le système d'acquisition sur le mini-ordinateur IBM-PC est constitué d'une carte d'entrée-sortie multifonction digitale et analogique, et d'un ensemble de librairies logicielles.

La carte DT2808 (Data Translation Inc.) contient un convertisseur analogique/digital sur 10 bits qui peut accepter jusqu'à 16 entrées analogiques, et deux convertisseurs digitaux/analogiques sur 8 bits qui peuvent fonctionner séparément ou ensemble. Elle contient aussi deux ports d'entrée-sortie digitaux à 8 lignes qui fonctionnent séparément ou ensemble.

L'ensemble de librairies PCLAB qui est utilisé en combinaison avec la carte est un ensemble de programmes en langage machine appelé par un programme Basic écrit par

l'opérateur.

Avec ce dispositif d'acquisition de données, on peut envoyer des ordres d'interruption à l'interféromètre, lever ces interruptions, commander les conversions et les entrées-sorties de données. On peut faire une acquisition à la vitesse maximale de 200 points par seconde. Le programme Basic écrit à la fin de l'acquisition les données enregistrées (nous avons choisi une limitation à 1000 valeurs) dans un fichier sur le disque dur de l'ordinateur.

VII.3.b) Organigramme général du programme de traitement

Le fichier spectre écrit par le programme d'acquisition sur disque dur, est lu par le programme de traitement. Les 1000 points sont rangés dans un tableau en mémoire et l'opérateur définit alors les bornes du travail, lesquelles peuvent comprendre tous les points enregistrés. Un second tableau, à dimension variable contient alors les valeurs nécessaires à l'étude.

À partir de cette étape, le programme est structuré autour d'un menu principal qui propose différents travaux, chacun étant obtenu par appel d'un sous-programme. Cette structure permet des compilations séparées de chaque sous-programme dans le cas où des modifications sont à faire, elle permet aussi l'ajout d'autres sous-programmes de travail dans la limite de l'espace-mémoire (512 k-octets), si l'expérience évolue vers l'étude d'autres problèmes

physiques.

L'organigramme général (fig.VII.1) est centré sur le tableau des points nécessaires à l'étude (typiquement 100 à 300 points pour une raie). On distingue trois catégories de travaux :

- les travaux effectués sur les points enregistrés tels que les corrections, le calcul de surface, le calcul de largeur de raie (en points), et les tracés.

- les calculs d'intensité ou de largeur de raies qui font intervenir la forme du profil de la raie et pour lesquels il faut indiquer les paramètres de l'expérience

- les changements de données enregistrées, qui permettent de redéfinir les bornes d'une raie dans le spectre, de passer à un autre domaine du fichier enregistré et de changer de fichier.

On peut, grâce à cette architecture de programme, travailler de façon continue sur un grand nombre de raies, les paramètres de l'expérience n'étant modifiés que si cela est nécessaire.

VII.3.c) Travail sur les valeurs enregistrées

Plutôt qu'un programme de détection automatique de raies, nous avons préféré laisser l'opérateur libre de décider le nombre de points qui définissent la raie de part et d'autre de son sommet. Après visualisation des valeurs d'absorption du spectre, il fixe donc les bornes d'étude d'une raie en particulier et peut la recadrer à tout moment. Comme nous l'avons vu précédemment, on consacre en moyenne 150 échantillons de mesure à chaque raie.

L'expérience montre que la division analogique permettant d'obtenir le rapport $\frac{I_t}{I_0}$ avant acquisition digitale, n'est jamais parfaite. On observe ainsi typiquement une variation relative de la ligne de base de 1 pour 300, ce que l'on peut corriger informatiquement par une normalisation à la valeur de base soit par une division, soit par une soustraction en chaque point de la raie. La raie est ainsi "redressée".

Il apparaît parfois des valeurs aberrantes isolées résultant d'une impulsion transitoire apparue dans le spectre au cours de son enregistrement, et que l'intégration n'a pas fait disparaître. Il est donc nécessaire de pouvoir réajuster un point isolé dans le spectre.

Dans le cas d'une raie légèrement élargie par collision, donc présentant un profil de Voigt, on doit tenir compte d'un continuum d'absorption qui peut ne pas être apparent sur le spectre, en raison de la proximité d'autres

raies. Ceci venant du fait que même à des distances spectrales importantes du sommet de la raie (3 à 4 fois la largeur à mi-hauteur), il reste une absorption notable due à l'élargissement collisionnel. Il est donc important de définir soi-même la valeur d'absorption nulle, laquelle aura été mesurée au préalable en vidant la cuve d'absorption et en notant le signal $\frac{I_t}{I_0}$ obtenu. De même le signal de transmission nulle devra être mesuré avant traitement. Le programme de traitement permet alors de redéfinir la valeur de la ligne de base et du zéro. On reforme alors le tableau des points représentant une raie.

Après avoir opéré toutes les corrections nécessaires sur les points enregistrés, on peut calculer la largeur à mi-hauteur et la surface du profil observé (la fonction K définie en VII.2.b.)

Le programme de calcul de la surface opère (fig VII.2) en sommant les valeurs d'absorption comprises entre l'échantillon numéro i et l'échantillon correspondant à la même valeur absorbée de l'autre côté du sommet de la raie, ce qui donne la surface S_i . Il calcule ensuite l'abscisse G_i du centre de gravité de S_i , et l'écart algébrique entre cette valeur et la moyenne des G_i lorsque le paramètre i varie.

En observant l'évolution de la surface ainsi calculée, on s'aperçoit que celle-ci devient stationnaire quand le nombre d'échantillons pris en compte a atteint une certaine valeur. L'opérateur sélectionne alors la surface

qu'il considère être celle de la raie, et contrôle la symétrie de la raie en observant l'évolution des écarts entre les centres de gravité et leur moyenne.

Exemple d'application :

La figure VII.3 représente le résultat du programme appliqué sur une des raies enregistrées. Il s'agit de la composante e-e du doublet P26 de la bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ (cf. Annexe 2). Sont indiqués :

- DB et FN : les bornes du traitement informatique. Ce sont les numéros des valeurs d'enregistrement que l'opérateur a considéré comme étant les bornes de la raie dans le spectre. Dans cet exemple, 110 valeurs enregistrées représentent la raie.

- IBASE : la valeur maximale du signal enregistré sur le domaine compris entre DB et FN. C'est une valeur de mesure à la sortie d'un voltmètre, elle servira donc à la normalisation des valeurs enregistrées.

- Un tableau indiquant par lignes de dix le résultat de la soustraction entre la valeur IBASE et le signal enregistré en chaque échantillon de la raie. C'est donc une représentation de la raie en valeurs absorbées, laquelle permet une visualisation aisée sur écran du mini-ordinateur

et facilite le choix des bornes DB et FN.

- Un tableau à quatre colonnes donnant à chaque ligne le numéro d'échantillon à partir duquel est calculé la surface de la raie, la position en abscisse de la médiane de cette surface, l'écart entre cette valeur de médiane et la moyenne de toutes les médianes lorsque le numéro du premier échantillon (1ère colonne) varie, enfin la valeur de la surface calculée entre l'échantillon dont le numéro est indiqué en première colonne et son symétrique en valeur absorbée par rapport au sommet de la raie.

- la moyenne des médianes de la raie

- la correction du zéro de signal

- la largeur à mi-hauteur du profil observé.

Toutes les indications ont pour unité le pas d'échantillonnage. On vérifie que la raie est encadrée par des valeurs nulles d'absorption, que la surface est stationnaire pour ses premières valeurs calculées et que le domaine de traitement est bien centré sur le sommet de la raie. L'opérateur sélectionne la valeur de surface qu'il estime être la bonne, soit pour cette exemple :

$$S = 51.941$$

Le pas d'échantillonnage de cette raie est :

$$\sigma_p = 2,185 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

Ce qui fait une largeur équivalente :

$$W = S \cdot \sigma_p$$

$$W = 11,35 \text{ cm}^{-1}$$

Remarquons la variation de l'écart "medi-moy." dans le tableau, elle est très faible autour de la valeur :

$$e = 0,08 \cdot \sigma_p$$

$$e = 1,7 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$$

L'écart relatif est donc $\frac{e}{\sigma} \approx 10^{-8}$, on voit que la raie enregistrée a une symétrie satisfaisante.

VII.3.d) Mesures sur la raie

Jusqu'alors la raie étudiée était définie en abscisse par les numéros d'échantillons. Maintenant, nous introduisons les paramètres qui définissent son pas d'échantillonnage : la différence de marche moyenne de l'interféromètre (δ) le pas de sa variation (δp) lors de l'enregistrement et le nombre d'ondes de la raie (σ_0) en son sommet. On peut alors définir l'échelle en abscisse du spectre enregistré; entre deux points d'échantillonnage, on a :

$$d\sigma = \sigma_0 \cdot \frac{\delta p}{\delta}$$

On introduit par le même sous-programme les paramètres tels que la pression du gaz absorbant (p), la pression totale (p_t) (pour les élargissements collisionnels), la demi-largeur Doppler (γ_D) (qui dépend de la température du gaz notamment), et la longueur (L) du trajet dans la cuve.

Dans l'hypothèse où la raie présente un profil Gaussien on a alors la possibilité de calculer la largeur à mi-hauteur du profil observé et l'intensité S^0 de la raie en utilisant sa largeur équivalente mesurée. On peut aussi calculer d'après les relations 7.2 et 7.4, S^0 en chaque point de la raie, ce qui permet de vérifier l'hypothèse du profil Gaussien.

Si l'on suppose que la raie présente un profil de Voigt, dans le cas d'un élargissement collisionnel, on peut alors calculer son paramètre d'élargissement γ^0 , et calculer son intensité S^0 en chaque point d'échantillonnage. Nous avons utilisé pour cela un programme publié [31] qui permet la représentation de la fonction de Voigt.

Le développement de la méthode de réalisation du spectre par balayage de la température de fonctionnement des diodes, nous permet d'envisager l'étude des raies en profil de Lorentz, ce qui nous était interdit jusqu'alors par la méthode de balayage du courant de polarisation qui est beaucoup plus restrictive en domaine spectral.

Nous verrons par la suite des exemples des résultats obtenus par cette chaîne de traitement de données.

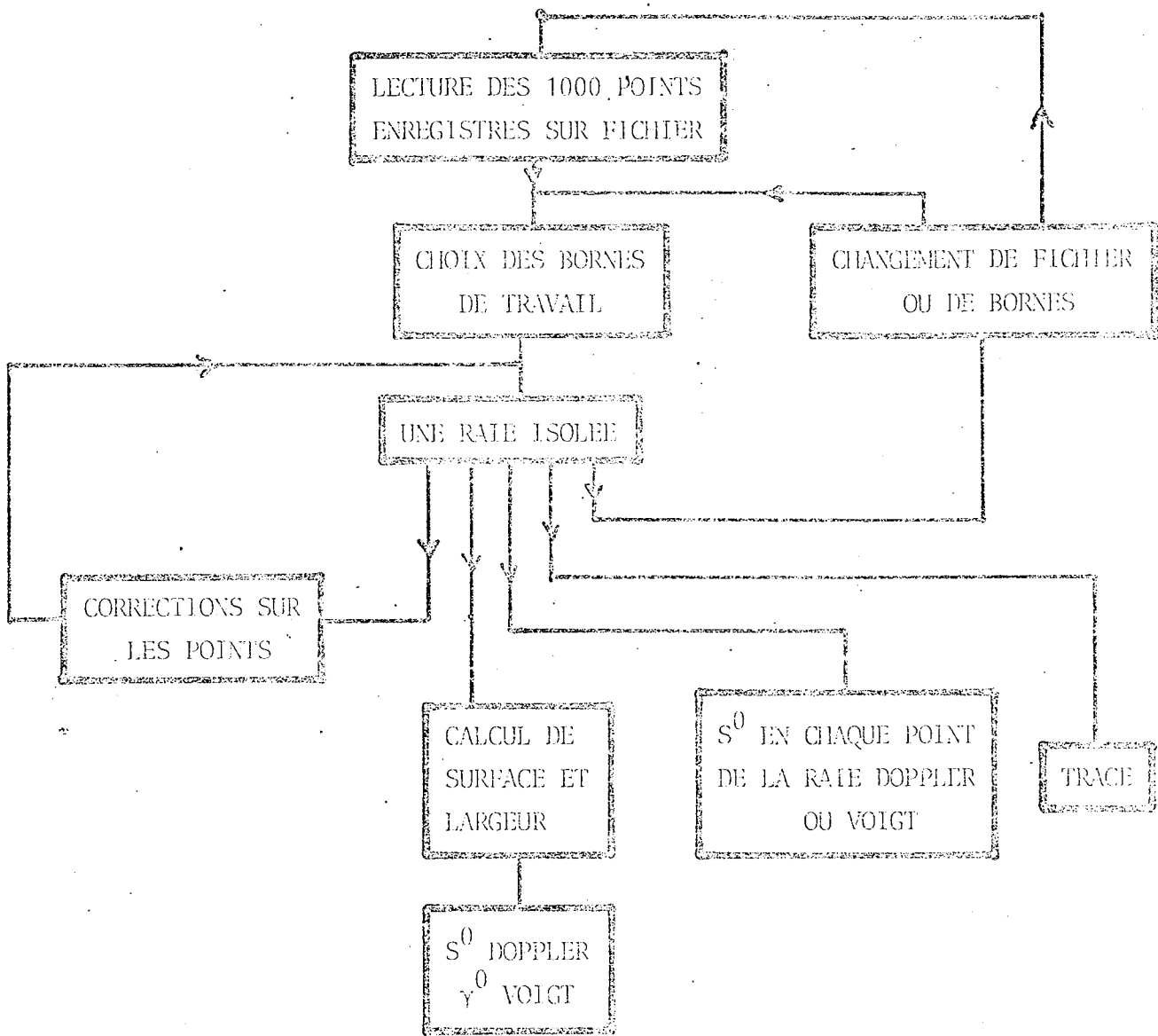


FIGURE VII-1: ORGANIGRAMME GENERAL DU PROGRAMME DE TRAITEMENT

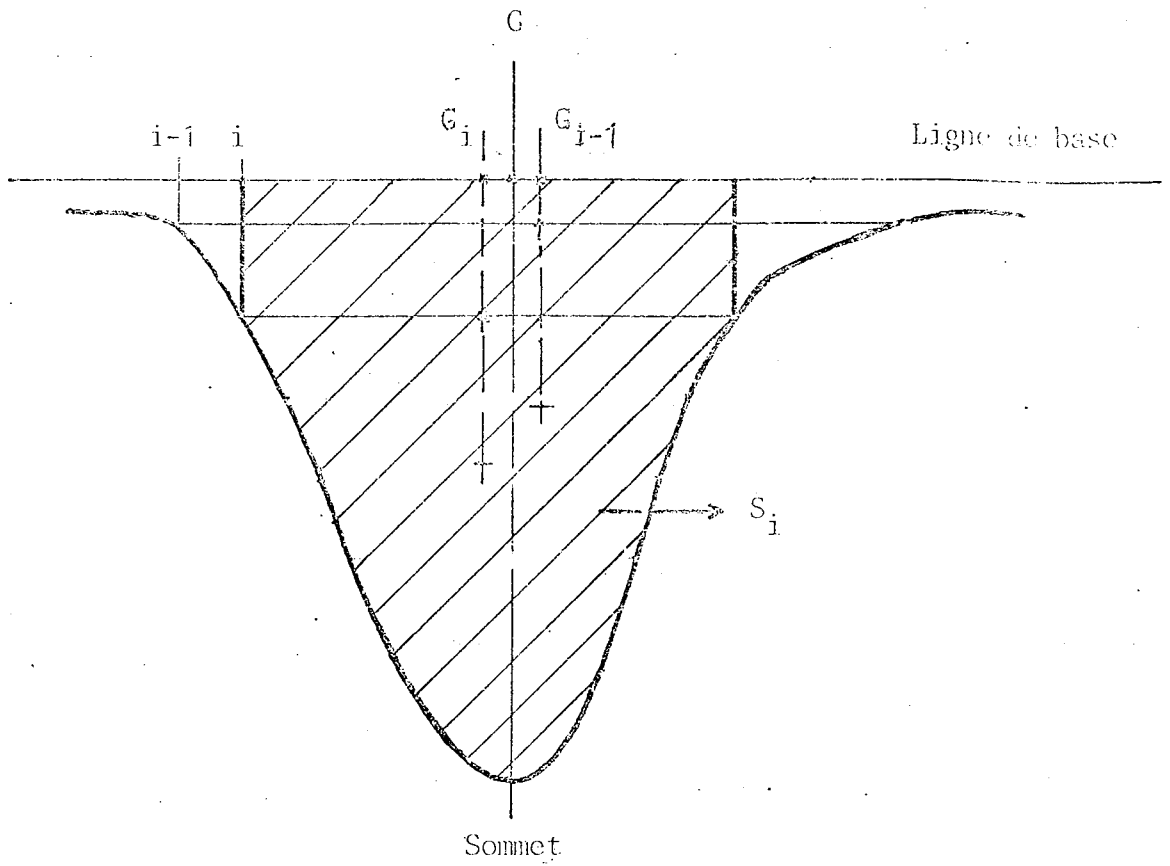


FIGURE VII-2 : CALCUL DE SURFACE DE RATE
 DETERMINATION DU CENTRE DE GRAVITE

CHAPITRE VIII

PRESENTATION DES RESULTATS OBTENUS
ET CONCLUSIONS

VIII.1) CHOIX DES RAIES ETUDIEES

Dans cette partie, nous présentons les résultats obtenus en mesure d'intensité et de paramètres d'élargissement sur quelques raies de $N_2 D$ (cf. Annexe 2). Les intensités ont été mesurées sur le doublet P(26) de la bande chaude $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ car les deux composantes e-e ($2185,5256cm^{-1}$) et f-f ($2185,4748cm^{-1}$) [24] de ce doublet sont en première approximation d'intensités égales et il n'y a pas de raies provenant d'une variété isotopique qui soient au même nombre d'ondes [25]. Ces deux raies sont donc idéales pour une vérification de la méthode.

Nous avons préféré, pour les mesures de paramètres d'élargissement, présenter une raie qui soit plus isolée dans le spectre. Nous avons donc choisi la raie P(39) ($2186,0024cm^{-1}$) [25] de la bande ν_3 .

VIII.2) MESURES D'INTENSITE

Les résultats présentés portent sur deux pressions différentes du gaz, 560 et 632 mT, mesurées avec une erreur relative inférieure à 1% à l'aide d'un baratron, chacune correspondant à l'enregistrement d'un fichier de 1000 valeurs sur le disque du mini-ordinateur.

Sur chaque fichier, nous enregistrons deux fois le doublet, ce qui consacre 250 points à l'enregistrement d'une

rais. Nous commandons la variation de différence de marche dans le sens croissant d'abord pour balayer le doublet dans le sens des nombres d'ondes décroissant, puis nous inversons le sens de balayage pour le deuxième enregistrement du doublet. Sur la figure VIII.1, nous voyons ainsi l'enregistrement répété du doublet. On remarque la rectitude de la ligne de base.

La longueur du trajet optique dans la cuve d'absorption est de $(5,735 \pm 0,001)$ cm, la largeur à mi-hauteur $2\gamma_D$ du profil de chaque composante du doublet en élargissement Doppler est théoriquement :

$$2 \gamma_D = 4,05 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

à cette température ambiante de travail (22°C).

Après utilisation des programmes de calcul de surface et d'intensité dans le cas d'un élargissement par effet Doppler, les résultats sur les différents enregistrements sont les suivants :

Pression (mT)	Composante du doublet	Largeur à mi-hauteur du profil, (.10 ⁻³ cm ⁻¹)	Intensité S° (cm ⁻² atm ⁻¹)	Ecart entre composantes (.10 ⁻³ cm ⁻¹)
560	e-e	4,66	0,8902	50,511
	f-f	4,62	0,8904	
	e-e	4,61	0,8903	50,514
	f-f	4,59	0,8870	
632	e-e	4,67	0,8944	50,514
	f-f	4,64	0,8868	
	e-e	4,61	0,8832	50,507
	f-f	4,63	0,8872	

On a donc après cette série d'enregistrements comme largeur L et intensité S° communes aux deux composantes du doublet :

$$L = (4,63 \pm 0,03) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

$$S^{\circ} = (0,889 \pm 0,003) \text{ cm}^{-2} \text{ atm}^{-1}$$

et comme écart spectral entre les deux composantes :

$$\Delta_{\nu} = (50,511 \pm 0,003) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

Les écarts quadratiques moyens indiqués ci-dessus concernent les dispersions des mesures.

Pour ce qui est de la mesure de l'intensité absolue S° d'une raie, nous pensons être limités en précision par la qualité du diviseur analogique que nous avons utilisé, lequel est certainement entaché d'une erreur de l'ordre de 1% de sa pleine échelle. Cette erreur se répercute sur les mesures d'intensité et de largeur à mi-hauteur, mais

n'intervient pas dans la détermination du centre de gravité de chaque composante du doublet, et par conséquent dans la mesure de leur écart spectral.

VIII.3) MESURES DE PARAMETRES D'ELARGISSEMENT DE N_2O PAR L'AZOTE.

Nous avons utilisé un mélange gazeux $N_2O - N_2$ préparé à l'avance dans une réserve, avec 1% de N_2O . Le mélange est détendu dans la cuve d'absorption jusqu'à obtention de la pression désirée et chaque valeur de cette pression P correspond à la création d'un fichier de mille valeurs enregistrées sur le disque dur du mini-ordinateur.

Pour chaque fichier, nous enregistrons quatre fois la raie étudiée en l'explorant alternativement en nombre d'ondes croissant puis décroissant. Le pas d'échantillonnage est adapté à l'élargissement de la raie de telle façon que chacune d'elles soit représentée par 200 valeurs, quelle que soit la pression du mélange gazeux.

Cette dernière est mesurée en utilisant un manomètre à mercure et un cathétomètre, nous estimons donc l'erreur sur la pression à moins de 1%. La température ambiante est de 22°C, le trajet optique dans la cuve d'absorption est de 5,735 cm. Après acquisition des données sur le mini-ordinateur, un programme calcule immédiatement le paramètre d'élargissement par collision γ^0 dans l'hypothèse

où le profil de la raie enregistrée peut être représenté par une fonction de Voigt.

Nous présentons les résultats obtenus sur la raie P(39) de en donnant pour chaque valeur de pression du mélange gazeux les valeurs du paramètre d'élargissement collisionnel, correspondant aux enregistrements successifs de la raie.

Pression (Torr)	$\gamma \times 1000$ $\text{cm}^{-1} \text{atm}^{-1}$		
100,0	71.57	53,0	70.58
	71.62		70.60
	71.55		70.98
	71.61		70.92
71,8			71.03
	71.44	32,5	70.44
	71.22		70.70
	71.28		70.59
	70.99		69.78
70.68			

On en tire comme valeur moyenne, affectée d'un écart quadratique moyen de dispersion:

$$\gamma^0 = (71,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-3} \text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}$$

Remarque.

Signalons que des mesures effectuées dans notre laboratoire avec le spectromètre à transformation de Fourier décrit dans cette thèse, ont donné [24] :

$$S^{\circ} = (0,95 \pm 0,04) \text{ cm}^{-2} \text{ atm}^{-1}$$

pour chaque composante du doublet P(26) de la bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$

Avec le spectromètre à réseau du laboratoire [32], on a obtenu [33] :

$$\gamma^{\circ} = (71 \pm 3) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1} \text{ atm}^{-1}$$

pour la raie P(39) de la bande .

Les valeurs que nous présentons à partir des spectres par diodes laser sont donc en bon accord avec celles-ci. Il convient de leur attribuer une erreur relative sur la valeur absolue de 2%, compte tenu des conditions expérimentales, tant pour les mesures d'intensité que pour les mesures de paramètres d'élargissement, ces derniers étant mesurés en utilisant la valeur du signal absorbé au sommet de la raie. Par contre, la méthode de pointé de la raie par les centres de gravité est beaucoup plus précise, nous y revenons au paragraphe suivant.

VIII.4 ANALYSE DES MESURES ET CONCLUSIONS

On remarquera tout d'abord la reproductibilité des mesures, qu'elles soient d'écart spectraux ou d'intensité.

Elle est toujours de l'ordre du millième en valeur relative. L'autre constatation importante est la largeur systématiquement trop élevée des raies élargies par effet Doppler (VIII.2), la valeur de pression nous assurant que cette cause d'élargissement est bien la seule possible au niveau du gaz.

On est donc en présence d'une fonction d'appareil non négligeable, dont la largeur à mi-hauteur peut être estimée, par déconvolution, à :

$$\Delta\sigma = 0,001 \text{ cm}^{-1}$$

Rappelons le critère de symétrie d'une raie dont nous disposons dans le résultat du programme de calcul des surfaces (Fig.VII.3), on avait pour chaque composante du doublet P(26) un écart moyen pour le centre de gravité de la raie, égal à :

$$e = 1,7 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$$

Ce qui fait une erreur relative sur le pointé de raies :

$$\frac{\Delta\sigma_0}{\sigma_0} \approx 10^{-8}$$

Nous pouvons étudier pour chaque échantillon de la raie enregistrée, l'écart à la fonction de Gauss définie par γ_D calculé, et S° mesuré par la méthode de la largeur équivalente.

On s'aperçoit alors que la raie enregistrée, et la fonction de Gauss représentant la raie "théorique", se

rencontrent à mi-hauteur (Fig.VIII.2) la raie enregistrée ayant subi un élargissement par la fonction d'appareil.

Ces diverses constatations nous ont amenés à faire deux hypothèses :

1°) nous sommes en présence d'une émission multimode sur un domaine de $0,001 \text{ cm}^{-1}$.

2°) nous sommes en présence d'une émission monomode, mais ce mode est affecté d'un bruit à haute fréquence qui le fait varier en nombre d'ondes sur un domaine de $0,001 \text{ cm}^{-1}$. Ces fluctuations, trop rapides, n'ont pu être corrigées par l'asservissement.

Le système électronique d'intégration du signal donne une valeur moyenne du signal transmis (et normalisé) par la cuve d'absorption, la moyenne étant effectuée sur la plage d'oscillation à haute fréquence, en nombre d'ondes. Par conséquent, un moyennage sur le flanc d'une raie, donne une valeur identique à la valeur instantanée au centre de la plage d'oscillation, ce que l'on vérifie au point de rencontre de la raie enregistrée de la raie théorique. Un moyennage autour du sommet donne un signal transmis plus élevé que le signal transmis exactement au sommet de la raie, car on explore ce sommet sur un domaine spectral de $0,001 \text{ cm}^{-1}$. Enfin un moyennage autour des points de faible

absorption de la raie, donne pour les mêmes raisons, un signal transmis plus faible que celui de la raie "théorique". Tout ceci n'enlève rien à la précision sur la connaissance de la position relative d'un échantillon dans le spectre. Elle est de 10^{-8} sur son nombre d'ondes moyen.

Il nous reste pour l'avenir à améliorer les qualités de notre asservissement en rapidité et à compter sur les progrès de la technique de fabrication des diodes afin que leur bruit haute fréquence soit réduit et que leur émission soit strictement monomode sur un domaine spectral qui puisse être isolé.

En dernière remarque, signalons que les fluctuations résiduelles de la différence de marche sont dues aux turbulences atmosphériques; nous les avons estimé à quelques centaines d'Angström au cours de nos expériences sur les diodes laser, ce qui fait dans ce cas précis une stabilité relative:

$$\frac{d\delta}{\delta} = 10^{-8}$$

δ étant la différence de marche.

Il arrive que nous obtenions une précision relative égale à:

$$\frac{\Delta\sigma_0}{\sigma_0} = 10^{-9}$$

sur la position en nombre d'ondes ν_0 d'une raie d'absorption dans un spectre réalisé avec les diodes laser, en mode asservi. Cette précision étant mesurée en observant l'écart moyen du centre de gravité de la raie; elle est

inférieure à $\frac{d\delta}{\delta}$ car pendant la durée d'enregistrement de la raie, soit environ une minute, on "intègre" la turbulence atmosphérique.

Ces précisions obtenues sur les pointés de raie montrent bien que l'erreur à long terme sur la différence de marche est inférieure à quelques dizaines d'Angström, quelle que soit la valeur de cette différence de marche, ceci grâce aux performances de son asservissement. Notons que la mise sous vide de l'interféromètre devrait encore améliorer ces performances.

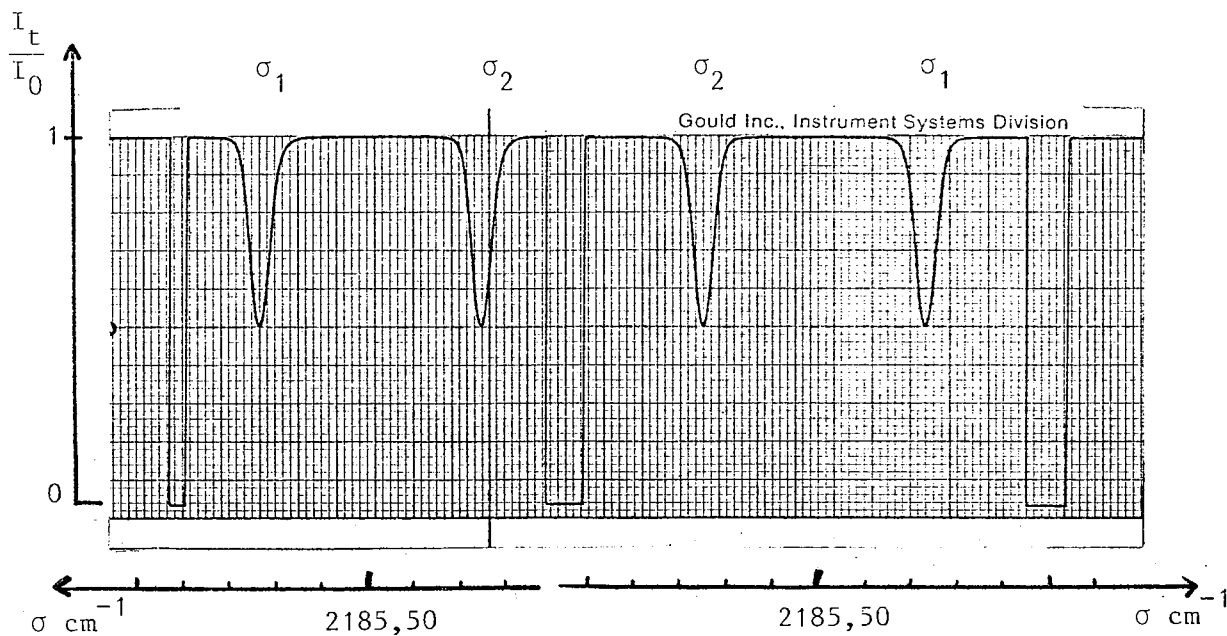


FIGURE VIII-1 : Le doublet P(26) de la bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ de N_2O , enregistré deux fois

$$\sigma_1 = 2185,5256 \text{ cm}^{-1} \text{ (e-e)}$$

$$\sigma_2 = 2185,4748 \text{ cm}^{-1} \text{ (f-f)}$$

pression : 0,666 Torr

longueur de cuve : 5,735 mm

température : 22°C

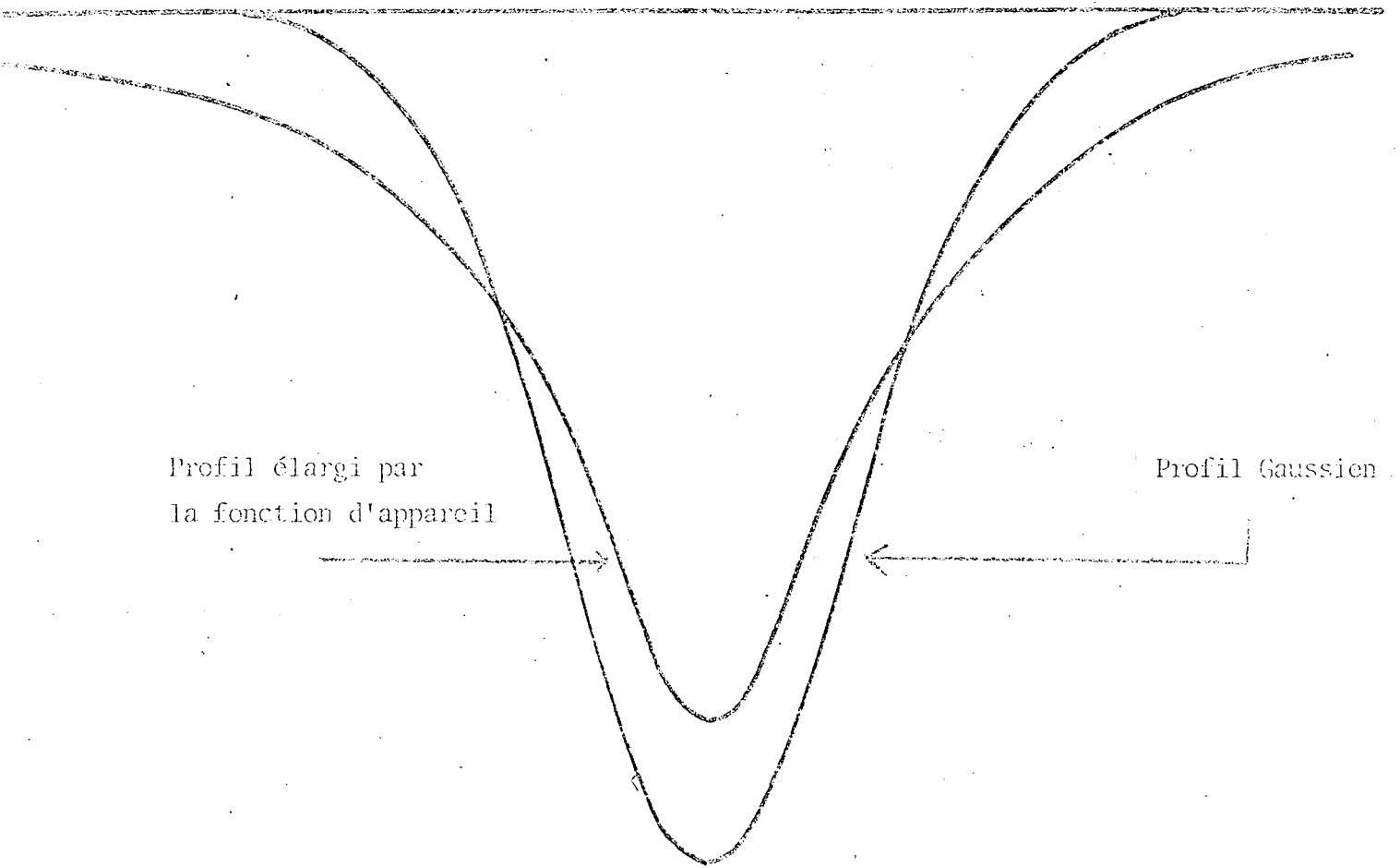


Figure VIII-2 : Profils d'une raie d'absorption

- élargie par effet Doppler (Gaussien)
- élargie par une fonction d'appareil

REFERENCES

- [1] M.G.A. Bernard et Duraffourg, Phys. Status Sol., 1, p. 699 (1964)
- [2] J.F. Butler, A.R. Calawa, R.J. Phelan, A.J. Strauss, R.H. Rediker, Solid State Commun. 2, 303 (1964)
- J.F. Butler, A.R. Calawa, R.J. Phelan, T.C. Harman, A.J. Strauss and R.H. Rediker, Appl. Phys. Lett. 5, 75 (1964)
- J.F. Butler, A.R. Calawa, J. Electrochem. Soc., 112, 1056 (1965)
- [3] J.M. Besson, J.F. Butler, A.R. Calawa, W. Paul, R.H. Rediker Appl. Phys. Lett. 7, 206 (1965)
- [4] H. Preir, Appl. Phys. 20, 189 (1979)
- [5] E.D. Hinkley, Ch. Freed, Phys. Rev. Lett. 23, 277 (1969)
- [6] G.G. Venkatesh, R.S. Eng, A.W. Mantz, Appl. Opt. 19, 1704 (1980)
- [7] R.S. Eng, A.W. Mantz, T.R. Todd, Appl. Opt. 28, 1088 (1979)
- [8] J. Reid, D.T. Cassidy, R.T. Menzies, Appl. Opt. 21, 3961 (1982)
- [9] S.P. Reddy, W. Ivancic, V.M. Devi, A. Baldacci, K.N. Rao, A.W. Mantz, R.S. Eng, Appl. Opt., 18, 1350 (1979)
- [10] J.N.P. Sun, M.L. Olson, D.L. Grielle, P.R. Griffiths, Appl. Opt., 19, 2762 (1980)
- [11] P. Connes, Rev. Opt. 35, 37 (1956)
- P. Bouchareine, P. Connes, J. Phys., 24, 134 (1963)
- [12] R. Beer, D. Marjanemi, Appl. Opt., 5, 1191 (1966)
et réf. à P. Connes
- [13] J. et P. Connes, J. Opt. Soc. Amer., 56, 896 (1966)
et Communication au Colloque, J. Phys., 28, C2-57 (1967)
- [14] J. Connes, Thèse, Paris (1961) et Revue d'Optique, 40 (1961)
- [15] L. Henry, A. Valentin, W.J. Lafferty, J.T. Hougen, V. Malathy Devi, P.P. Das, K.N. Rao, J. Mol. Spectrosc. 100, 240 (1983)
- [16] P. Connes, G. Michel, Appl. Opt., 14, 2067 (1975)
- [17] P. Fellgett, J. Phys. Rad., 19, 187 (1958)
- [18] P. Jacquinet, J. Phys. Rad., 19, 223 (1958)

- [19] J.P. Mailliard, Thèse Docteur Ingénieur, p. 66, Orsay (1967)
- [20] H. Delouis, Thèse, Paris (1973)
- [21] J. Chazelas, J. Pliva, A. Valentin, L. Henry,
J. Mol. Spectrosc., 110, 326 (1985)
- [22] A. Valentin, L. Henry, Ch. Nicolas, A. Mantz, Communications au
congrès de Frague (1984); Columbus (1985), Riccione (1985) (à
venir)
- [23] P. Juncar, J. Pinard, Opt. Com., 14, 438 (1975)
- [24] J.L. Teffo, A. Valentin, A. Henry, Communication au congrès de
Reading (1981)
- [25] C. Amiot, G. Guelachvili, J. Mol. Spectrosc. 59, 171 (1976)
C. Amiot, Thèse, Orsay (1976)
- [26] Bourgin, Phys. Rev., 29, Juin 1927
Phys. Rev., 32, Août 1928
- W.S. Benedict, R. Herman, G.E. Moore, S. Silverman,
Can. J. Phys. 34, 850 (1956)
- [27] Ladenburg, Z. Physik, 65, 200 (1930)
- [28] Ladenburg, Reiche, Ann. Physik, 42, 161 (1913)
- [29] R. Courant, D. Hilbert,
Methods of Mathematical Physics, p. 482, Interscience (1953)
- [30] P.A. Jansson, C.L. Korb, J.O.R.S.T., 8, 1399 (1968)
- [31] B.H. Armstrong, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 7, 61
(1967)
- [32] A. Valentin, Thèse, Paris (1977)
- [33] A. Henry, M. Margottin-Maclou, N. Lacombe,
J. Mol. Spectrosc., 111, 291 (1985)
- [34] J. Pinard, Thèse, p. 55, Paris (1968)
- [35] A. Maréchal, Imagerie Géométrique - Aberrations, Ed. Rev. Opt.
(1952)

ANNEXE 1

MONOCHROMATEUR A DISPERSION NULLE

FILTRAGE DES MODES DE LA DIODE LASER

Afin de séparer les modes longitudinaux du faisceau émis par la diode laser, nous avons utilisé un filtre spectral passe-bande. Afin de pouvoir calibrer les spectres avec l'interféromètre de Michelson à champ compensé, il était préférable de disposer d'un faisceau non seulement monochromatique mais aussi sans dispersion angulaire lorsque son nombre d'ondes varie. Pour réaliser cela, nous avons adapté un spectromètre sans dispersion à réseau, construit au laboratoire [34] au problème particulier des diodes laser.

A1.1) DESCRIPTION OPTIQUE

La figure A1 représente le trajet du rayon moyen d'un faisceau lumineux dans le monochromateur.

A l'extérieur du monochromateur, le faisceau est focalisé sur un trou circulaire d'entrée T_1 , lequel se trouve dans le plan focal du miroir sphérique concave M_A , décalé verticalement par rapport au plan horizontal de symétrie du monochromateur.

L'onde plane formée par M_A est dirigée vers le réseau de diffraction, un second miroir M_B identique à M_A focalise ensuite le faisceau diffracté, sur le plan bissecteur d'un dièdre réfléchissant. Ce plan bissecteur est confondu avec le plan horizontal de symétrie du monochromateur.

Au niveau du dièdre, on réalise un filtrage spectral sur les images dispersées de T_1 correspondant chacune à un mode de la cavité laser. Le dièdre renvoie alors un faisceau dont la direction moyenne est parallèle à celle du faisceau incident. Le faisceau réfléchi rencontre le réseau et subit donc une dispersion de sens opposée au faisceau "aller". Il se forme donc une image en T_2 , symétrique de T_1 par rapport au plan horizontal de symétrie du monochromateur et le faisceau émergent, garde une direction fixe lorsque le réseau est mis en rotation ou que la longueur d'onde du faisceau lumineux varie.

Caractéristiques du monochromateur :

- réseau : 45 traits / mm
- angle de blaze : 28°
- hauteur du trait : 110 mm

M_A et M_B sont de focale $f = 1500$ mm, leurs surfaces réfléchissantes appartiennent à une même sphère.

trou T_1 : diamètre de 100 μm à 1 mm en fonction de la nécessité d'un filtrage spatial du faisceau de la diode laser.

A1.2) FILTRAGE SPECTRAL

Si la diode laser émet un faisceau contenant plusieurs nombres d'ondes correspondant à différents modes

de la cavité laser, on observe théoriquement dans le plan bissecteur du dièdre réfléchissant une série de taches lumineuses bien séparées, chacune correspondant à un mode. Par exemple, pour un nombre d'ondes moyen d'émission

$$\sigma = 2200 \text{ cm}^{-1}$$

lorsque le réseau reste fixe et que σ varie, on observe au niveau du dièdre une dispersion

$$\frac{dy}{d\sigma} = 0,6 \text{ mm} / \text{cm}^{-1}$$

Des modes distants spectralement de $0,5 \text{ cm}^{-1}$ formeront donc des taches distantes spatialement de

$$dy = 0,3 \text{ mm}$$

Si maintenant on fait varier les conditions de fonctionnement de la diode, le nombre d'ondes de chaque mode varie et en utilisant une fente de filtrage d'ouverture $0,3 \text{ mm}$ dans la direction de dispersion, on est assuré que le monochromateur ne transmet qu'un seul mode. C'est aussi à cet emplacement que nous choisissons de placer un modulateur optique, lequel servira à faire une détection synchrone des signaux ; on réalise ainsi une modulation sélective quant aux modes émis.

Nous avons utilisé une fente rectiligne d'ouverture

régliable et un modulateur dispason, chacun étant placé sur une focale d'astigmatisme de l'ensemble des miroirs M_A M_B et du réseau. La fente et le modulateur sont donc croisés et symétriques par rapport au plan bissecteur du dièdre.

Prenons l'expression du chemin optique aberrant au troisième ordre en fonction des paramètres d'ouverture et de champ pour un miroir sphérique, dans l'air, et un point objet hors de l'axe optique dans le plan focal [35]:

$$\Delta = -\frac{h^4}{4R^3} - \frac{h^3 y' \cos\phi}{R^3} - \frac{h^2 y'^2}{R^2} \left[\frac{5}{2R} + \frac{1}{R} \cdot \cos 2\phi \right] + \frac{3}{2R^2} \cdot y'^3 \cdot \cos\phi$$

- . h' est la hauteur d'incidence sur la pupille (le réseau de diffraction)
- . y' la distance de l'image à l'axe optique (l'axe de symétrie longitudinale du monochromateur)
- . R le rayon de courbure du miroir sphérique
- . φ l'angle polaire sur la pupille, du point d'incidence.

Si l'on considère deux passages de l'onde sur le miroir sphérique pour que le faisceau arrive sur le dièdre et en ne considérant le réseau que comme étant une pupille circulaire, ce qui peut être obtenu au besoin par un diaphragme placé sur sa surface, le chemin optique aberrant

devient :

$$\Delta' = 2 \frac{h^4}{4R^3} + \frac{2h^2 y'^2}{R^2} \cdot \left[\frac{5}{2R} + \frac{\cos 2\phi}{R} \right]$$

Pour ce qui est du signe de Δ' , on considère qu'il y a avance d'onde car les systèmes optiques sont convergents.

Les termes impairs de coma et de distorsion de Δ ont disparu par raison de symétrie.

En passant en notation d'ouverture angulaire,

$$\alpha \approx \frac{2h}{R}, \quad \text{avec } h = 55 \text{ mm et } R = 3000 \text{ mm}$$

il vient :

$$\Delta' = \frac{\alpha^4 R}{32} + \frac{\alpha^2 y'^2}{4} \cdot \left[\frac{5}{R} + \frac{2 \cos 2\phi}{R} \right]$$

Le terme d'aberration sphérique devient négligeable. Les coefficients de courbure et d'astigmatisme sont respectivement :

$$C = \frac{5}{R}$$

$$A = \frac{2}{R}$$

La courbure de Petzval est donc :

$$P = \frac{9}{R}$$

Il convient de prendre en compte à ce niveau la

courbure spectrale $C_{rés}$ due au réseau de diffraction, les courbures des focales sagittales et tangentielles sont donc respectivement :

$$\begin{cases} C_s = \frac{11}{R} + C_{rés} \\ C_T = \frac{15}{R} + C_{rés} \end{cases}$$

avec :

$$C_{rés} = \frac{2k}{a \cdot \sigma \cdot R \cdot \cos\alpha}$$

k étant l'ordre auquel travaille le réseau, σ le nombre d'ondes du faisceau, a le pas du réseau.

Les distances des focales sagittale et tangentielle au plan focal paraxial sont respectivement :

$$\begin{cases} s' = \frac{C_s y'^2}{2} \\ t' = \frac{C_T y'^2}{2} \end{cases}$$

Dans le cas numérique qui nous intéresse :

$$y' = 130 \text{ mm}$$

$$R = 3000 \text{ mm}$$

$$k = 5$$

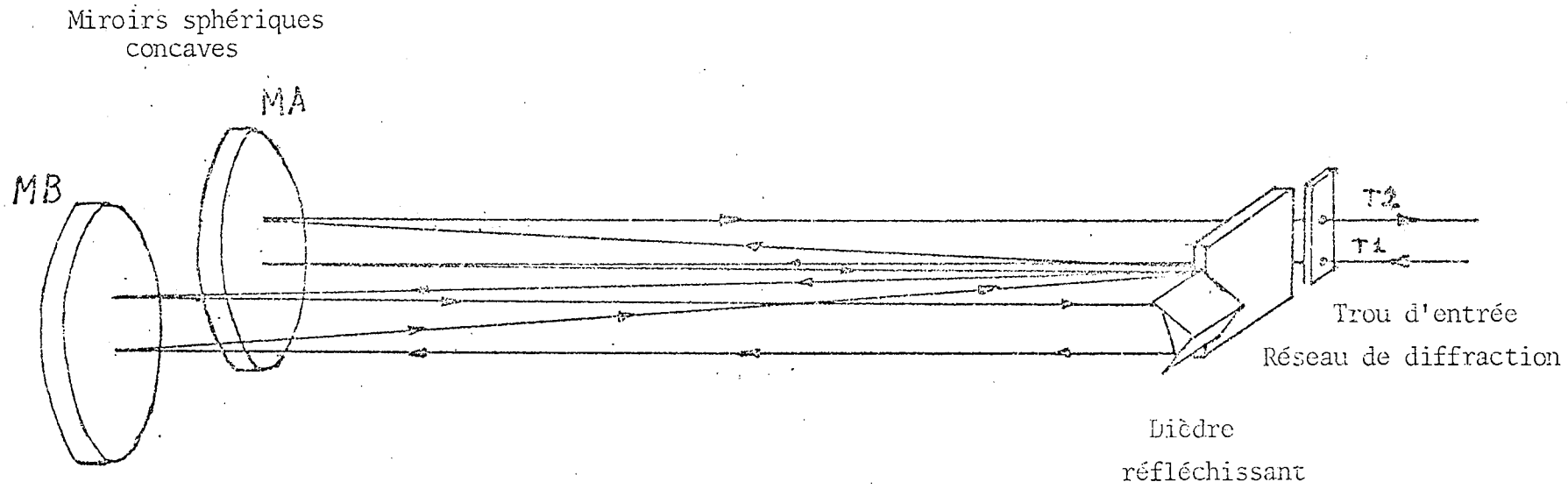
$$\sigma = 2280 \text{ cm}^{-1}$$

on trouve

$$\left\{ \begin{array}{l} s' = 40 \text{ mm} \\ t' = 51 \text{ mm} \end{array} \right.$$

Ce qui nous permet de placer mécaniquement l'arête de dièdre par rapport au plan focal des miroirs collimateurs du monochromateur, ainsi que la fente de filtrage au niveau de la focale tangentielle, et le modulateur au niveau de la focale sagittale.

Remarque : nous avons négligé dans ce calcul le fait que le plan d'incidence des rayons sur le réseau ne soit pas perpendiculaire aux traits du réseau. La distance entre le trou d'entrée T_1 et l'image de sortie T_2 est de 52 mm.



FigureA1 : Trajet du rayon moyen dans le monochromateur à dispersion nulle

ANNEXE 2

SUR LES BANDES ν_3 ET $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$
DE LA MOLECULE N_2O .

A2.1) NIVEAUX VIBRATIONNELS

La molécule N_2O , linéaire dans sa configuration d'équilibre, possède trois modes normaux de vibration (Fig.A2.1) nommés ν_1, ν_2 et ν_3 .

ν_1 et ν_3 correspondent à des déplacements longitudinaux des atomes suivant l'axe internucléaire, les énergies de vibration correspondantes sont non-dégénérées et dépendent respectivement des nombres quantiques ν_1 et ν_3 .

Par contre le mode de vibration ν_2 fait intervenir des déplacements transversaux des atomes ; la composante suivant l'axe internucléaire, du moment angulaire interne de la molécule, est non nulle et peut prendre deux valeurs algébriquement opposées, lesquelles sont équivalentes pour la description du niveau vibrationnel. Ce niveau est alors doublement dégénéré et l'énergie de vibration correspondante dépend de deux nombres quantiques ν_2 et l_2 , ce dernier étant associé au moment angulaire interne peut prendre les valeurs $\nu_2, \nu_2-2, \dots, -\nu_2$

On note un niveau d'énergie vibrationnel de la façon suivante :

$$(\nu_1 \nu_2 | l_2 | \nu_3)$$

l'énergie d'un niveau ne dépendant que de l_2^2 en l'absence d'interaction avec la rotation.

Par contre, si on tient compte de cette interaction, la dégénérescence est levée. Pour chaque valeur du nombre

quantique J associé au moment d'inertie de la molécule, on trouve sur le diagramme d'énergie deux niveaux très proches (dédoublé de type ℓ) notés "e" pour le plus bas et "f" pour le plus haut.

On peut définir deux constantes d'inertie et deux constantes de distorsion centrifuge "effectives" relatives aux niveaux e et aux niveaux f, très légèrement différentes.

A2.2) REGLES DE SELECTION

Les transitions de vibration-rotation que nous avons étudié correspondent à des bandes dites "parallèles", pour lesquelles le nombre quantique l_2 reste invariant :

$$\Delta l_2 = 0$$

La règle de sélection sur J est la suivante :

$$\text{si } l_2 = 0, \quad \Delta J = \pm 1$$

$$\text{si } l_2 \neq 0, \quad \Delta J = 0, \pm 1$$

Lors d'un dédoublement de type ℓ , une autre règle de sélection, portant sur la symétrie des fonctions d'onde, n'autorise des transitions que suivant le schéma :

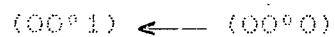
$$e \longleftrightarrow e \quad \text{pour } \Delta J = \pm 1$$

$$f \longleftrightarrow f$$

$$e \longleftrightarrow f \quad \text{pour } \Delta J = 0$$

A2.3) BANDE ν_3 DE N_2O (Fig.A2.2)

La bande ν_3 de N_2O sur la quelle nous avons fait les mesures de paramètres d'élargissement est associée à la transition :



C'est une bande parallèle avec $\Delta l_2 = 0$, constituée d'une branche P et une branche R qui correspondent respectivement à $\Delta J = -1$ et $\Delta J = +1$, lorsqu'on passe du niveau vibrationnel inférieur au niveau vibrationnel supérieur, chaque transition étant indicée par le nombre quantique rotationnel du niveau de départ.

Les nombres d'ondes des raies sont donnés par la formule :

$$\sigma = \sigma_0 + (B' + B'')m + (B' - B'')m - 2(D + D'')m - (D' - D'')m + 6 H m \quad (a)$$

Les constantes affectées d'un ' sont relatives au niveau supérieur, celles affectées d'un '' sont relatives au niveau inférieur.

σ_0 est le "centre de bande"

On a : $m = J'' + 1$ pour la branche R

$m = -J''$ pour la branche P

Pour un niveau vibrationnel

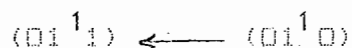
- B est la constante d'inertie

- D et H sont les constantes de distorsion centrifuges à l'ordre 3 et 4 en m pour D, à l'ordre 5 pour H. On a pratiquement :

$$H' = H'' = H$$

A2.4) BANDE $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ (FIG. A2.2)

La bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ de N_2O est associée à la transition



C'est donc une bande parallèle avec $\Delta l_2 = 0$; elle est constituée de trois branches P, Q et R, la branche Q correspondant à un J invariant pendant la transition.

Nous ne parlerons pas de cette branche, sa structure étant très serrée sur le spectre.

Le dédoublement de type ℓ se traduit par l'apparition d'un doublet pour chaque transition P(J'') ou R(J''), dont le centre de gravité en nombre d'ondes peut être pratiquement obtenu par la formule (a), en prenant les valeurs moyennes entre les deux constantes B et les deux constantes D des niveaux dédoublés, dépendant aussi de la transition.

L'écart spectral entre les deux composantes du doublet est donné par :

$$\Delta = | (q' - q'')m^2 + (q' + q'')m |$$

q' et q'' sont des constantes de dédoublement des niveaux supérieur et inférieur respectivement.

Il n'y a pas de niveau $J = 0$ car on doit avoir

$$J > 1_2$$

qui exprime que le moment cinétique total de la molécule est supérieur au moment angulaire interne.

A2.5) INTENSITE DE LA BANDE $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$

L'intensité d'une raie de vibration-rotation est proportionnelle à la population du niveau de départ, à la fréquence de la transition, et au carré du moment de transition. En ce qui concerne les doublets de la bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$:

- la différence relative des populations des niveaux e et f de départ des transition est de l'ordre de quelques millièmes,

- l'écart relatif des fréquences est de l'ordre de 10^{-5}

- les moments de transitions à l'ordre zéro sont identiques puisqu'en ce qui concerne la vibration, les fonctions d'onde Ψ_+ et Ψ_- qui décrivent les niveaux de départ sont les combinaisons linéaires :

$$\Psi_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\Psi_0(\nu_1, \nu_2, |1_2|, \nu_3) \pm \Psi_0(\nu_1, \nu_2, -|1_2|, \nu_3) \right]$$

Ψ_0 désignant les fonctions d'onde de vibration d'un oscillateur à deux dimensions.

On peut supposer que l'interaction vibration-rotation n'apporte qu'une contribution très faible à la différence des moments de transition $e-e$ et $f-f$, donc à la différence d'intensité des deux composantes d'un doublet.

Cette dernière n'a en tout cas jamais été mise en évidence aux cours de nos travaux.

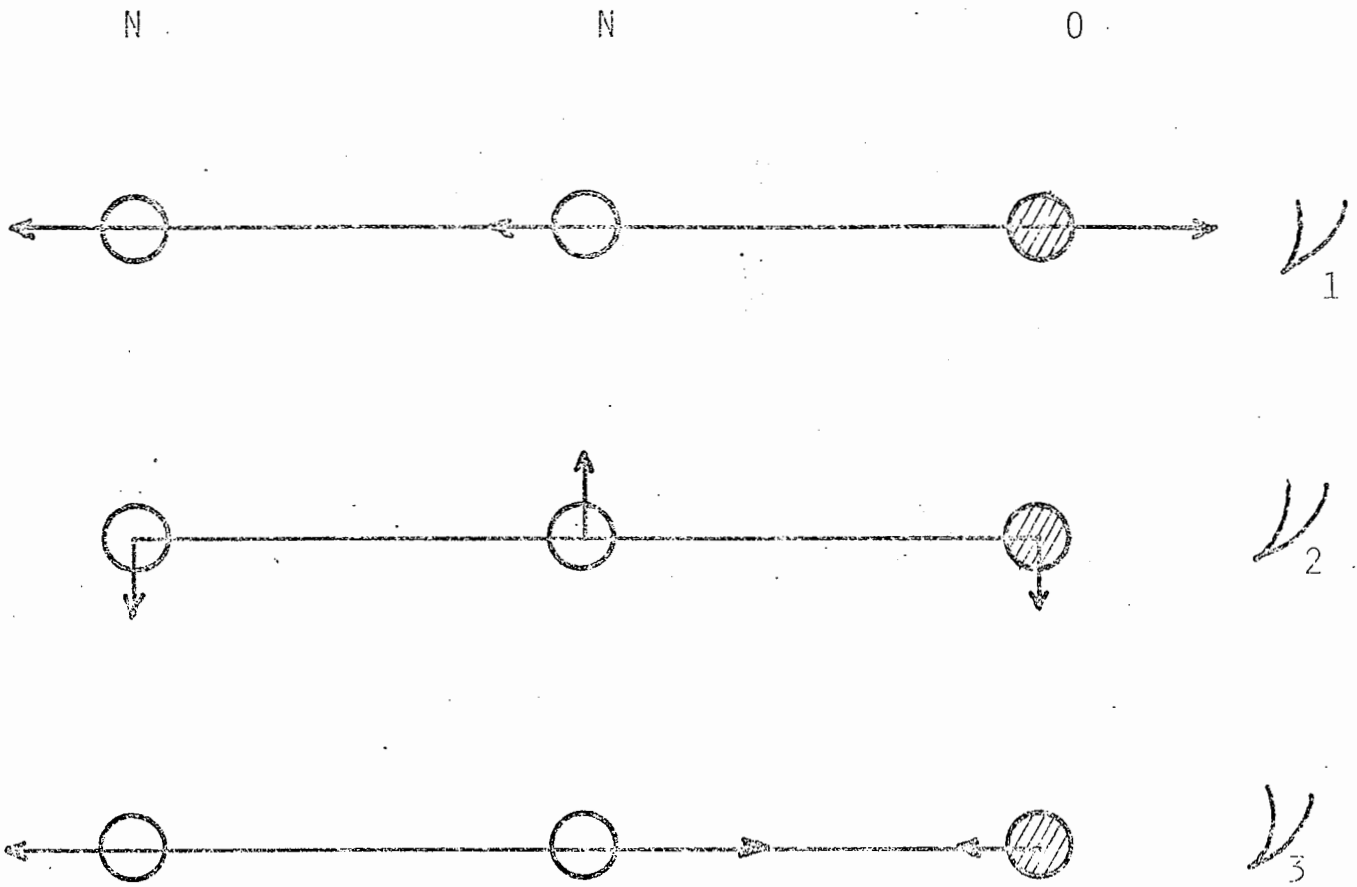


Figure A2-1 : Vibrations normales de la molécule N_2O

Figure A2-2 : Transitions permises en vibration-rotation sur les bandes ν_3 et $\nu_2+\nu_3-\nu_2$ de N_2O

