

Chapitre 6

La relation de Füchtbauer-Ladenburg

Objectifs spécifiques du chapitre 6:

- 1) *Faire le lien entre un taux d'absorption (ou d'émission stimulée) et la section efficace, la densité de flux de photons et une densité d'atomes par unité de volume;*
- 2) *savoir établir le lien entre les sections efficaces spectroscopiques, d'absorption et d'émission, et les coefficients d'Einstein, A et B;*
- 3) *comprendre l'origine de l'égalité des sections efficaces spectroscopiques d'absorption et d'émission;*
- 4) *pouvoir établir le lien entre le coefficient d'absorption et la section efficace spectroscopique;*
- 5) *expliquer pourquoi le coefficient d'absorption dans un milieu à l'équilibre thermodynamique ne peut pas être négatif;*
- 6) *définir ce qu'est une 'inversion de population' et expliquer en quoi cela implique la possibilité d'un coefficient d'absorption négatif;*
- 7) *connaître les définitions de taux d'embranchement d'une transition radiative, de rendement quantique de fluorescence et d'intensité saturante, et savoir utiliser ces notions dans un problème simple;*
- 8) *pouvoir utiliser la relation de Füchtbauer-Ladenburg pour calculer le spectre de section efficace d'une niveau excité à partir de la fonction $g(\nu)$ et du temps de vie τ_{rad} (devoir 2);*
- 9) *pouvoir établir l'équation de débit de l'évolution temporelle de la population de l'état excité d'un système à deux niveaux soumis à un champ électromagnétique (Cf. éq (20));*
- 10) *pouvoir expliquer pourquoi une inversion de population est impossible à obtenir dans un système à deux niveaux.*

Dans le dernier chapitre, nous avons vu que les processus d'absorption et d'émission stimulée associées à une transition entre deux niveaux d'énergies donnés étaient deux processus réciproques et symétriques. Nous avons aussi établi une relation importante entre les taux d'émission spontanée et stimulée. En effet, le taux d'émission stimulée dans un mode donné est égal au taux d'émission spontanée dans ce mode multiplié par le nombre de photons (qui est le nombre de quanta d'excitations) dans ce mode. Ces résultats nous amènent à conclure que le temps de vie d'un atome dans un niveau excité et la capacité de cet atome à absorber ou amplifier le rayonnement sont des quantités intimement reliées. Dans ce chapitre, nous allons établir la relation de Füchtbauer-Ladenburg, qui relie la section efficace d'émission au temps de vie du niveau excité (section 6.4). Mais avant d'arriver là, il nous faut établir les notions de section efficace spectroscopiques, d'émission ou d'absorption (section 6.1), et de temps de vie (section 6.3) d'une transition atomique. Nous allons par le fait même établir la notion de coefficient d'absorption (section 6.2), de taux d'embranchement, de rendement quantique de luminescence ainsi que le paramètre d'intensité de saturation (section 6.3).

6.1 Définition des sections efficaces spectroscopiques [1].

La notion de section efficace a été introduite pour décrire la probabilité qu'une interaction entre deux particules ait lieu. On la rencontre dans plusieurs disciplines de la physique et de la chimie, telles que la section efficace d'une réaction en physique nucléaire ou en chimie. La section efficace a pris une importance considérable dans la théorie cinétique des gaz pour la description des phénomènes de collision ou diffusion entre particules. Dans cette théorie, l'équilibre thermodynamique d'un ensemble de particules s'établit graduellement grâce à des échanges d'énergie qui ont lieu entre les différentes particules lorsqu'elles entrent en collision; la collision est un terme qui réfère à l'interaction brève et intense entre deux particules lorsqu'elles sont très proches l'une de l'autre. Le temps de retour à l'équilibre dépend alors du taux de collision et celui-ci va être proportionnel à la densité de particules, à leur vitesse ainsi qu'à une

propriété intrinsèque de la particule, que l'on nomme la section efficace car ses unités sont en mètres élevés au carré [2].

La notion de section efficace peut aussi être utilisée pour décrire des phénomènes d'absorption ou d'émission dans le cadre de l'interaction entre des photons et atomes. Nous allons dans ce chapitre assimiler le rayonnement à un ensemble de corpuscules, les photons, qui se déplacent à la vitesse de la lumière. Nous considérons que les photons appartiennent au même "mode", c'est-à-dire émettent tous à la même fréquence ν , avec la même direction du vecteur d'onde et avec la même polarisation. L'analogie classique d'un mode dans le vide serait une onde plane décrite par son vecteur d'onde, \vec{k} , et son vecteur polarisation du champ électrique, \vec{e} . On considère une densité de flux de photons F , mesurée en nombre de photons par unité de surface et par unité de temps [$\text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$] en interaction avec un ensemble d'atomes identiques répartis dans l'espace aléatoirement ayant une densité par unité de volume de N atomes, dont N_1 et N_2 [m^{-3}] sont dans les états fondamental et excité respectivement. Maintenant, on suppose que le taux d'absorption de ces photons, W_{12} [$\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$] est à la fois proportionnel à la densité de flux de photons F et à la densité d'atomes dans l'état fondamental, N_1 :

$$W_{12} = N_1 F \sigma_a, \quad (1a)$$

où σ_a [m^2] est le facteur de proportionnalité entre W_{12} et le produit FN_1 ; σ_a est une caractéristique de la transition atomique considérée lors de son interaction avec des photons dans le mode (\vec{k}, \vec{e}) . Du fait de ses dimensions en mètres carrés, nous appelons σ_a la section efficace spectroscopique d'absorption. Nous pouvons réécrire (1a) en fonction de l'intensité incidente, I en [W/m^2], en divisant F par l'énergie d'un

photon $F = \frac{I}{h\nu}$. On trouve alors:

$$W_{12} = N_1 \frac{I}{h\nu} \sigma_a. \quad (1b)$$

Une formule similaire existe pour le taux d'émission stimulée :

$$W_{21,st} = N_2 F \sigma_e, \quad (2a)$$

ou encore

$$W_{21,st} = N_2 \frac{I}{h\nu} \sigma_e, \quad (2b)$$

où σ_e est la section efficace d'émission, qui caractérise aussi une transition atomique donnée pour un photon de vecteur d'onde et de polarisation donnés.

Maintenant, au chapitre précédent nous avons établi les formules suivantes pour décrire les taux d'émission stimulée et d'absorption pour un rayonnement à spectre large:

$$W_{21,st} = B_{21} N_2 u \quad (5.8)$$

$$W_{12} = B_{12} N_1 u \quad (5.9)$$

De même, pour un rayonnement étroit à l'échelle de la largeur spectrale d'une transition, on aura:

$$W_{21,st}(\nu') = N_2 B g(\nu') U \quad (5.24)$$

et

$$W_{12}(\nu') = N_1 B g(\nu') U. \quad (5.25)$$

Notons que le paramètre B caractérise une transition entre deux niveaux atomiques en résonance avec le champ électromagnétique. Nous supposons dans ce qui suit un rayonnement monochromatique; ce sont alors les formules 5.24-25 qui s'appliquent. Par ailleurs, U étant la densité d'énergie électromagnétique par unité de volume [J/m^3], on peut relier U et I de la façon suivante :

$$U = \frac{I}{c}, \quad (3)$$

où l'on a supposé un milieu sans dispersion dont l'indice de réfraction du milieu égal à un [3]. L'insertion de (3) dans 5.24-25 et la comparaison avec (1b) et (2b) donnent :

$$\sigma_a(\nu) = \sigma_e(\nu) = B \frac{h\nu}{c} g(\nu) \quad (4)$$

Donc, l'égalité des coefficients d'Einstein B_{12} et B_{21} pour l'émission stimulée et l'absorption implique l'égalité des sections efficaces spectroscopiques d'absorption et d'émission. C'est la raison pour laquelle on laisse tomber les indices "e" et "a", que nous allons remplacer parfois par ceux des deux niveaux i et j concernés par la transition, ex. σ_{ij} , lorsque plusieurs niveaux interviennent dans le problème. L'examen de l'éq. (4) montre que la section efficace dépend de la fréquence : elle épouse essentiellement la forme de la raie d'émission $g(\nu)$, à l'exception d'un facteur proportionnel à ν , qui ne déforme pas de façon appréciable la fonction $g(\nu)$ si cette dernière est étroite par rapport à ν , ce qui est très souvent le cas.

6.2 Coefficient d'absorption

Considérons maintenant une onde électromagnétique plane d'intensité I se propageant dans un milieu où les photons peuvent entrer en résonance avec une paire de niveaux, Cf. Fig. 1. Il peut donc y avoir absorption et émission (stimulée et spontanée) de photons, et l'intensité de l'onde va changer à mesure que l'onde se propage dans le milieu. Nous allons établir un bilan d'énergie pour les photons dans le mode: (\vec{k}, \vec{e}) . La conservation de l'énergie appliquée à un élément de volume infinitésimal s'écrit:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{I}_{\vec{k}, \vec{e}} = h\nu (W_{21, st, \vec{k}, \vec{e}} - W_{12, \vec{k}, \vec{e}} + W_{21, sp, \vec{k}, \vec{e}}) \quad (5)$$

où $\nu = \frac{ck}{2\pi}$, le membre de gauche décrit la divergence de l'intensité et le membre de droite décrit le taux de production de puissance électromagnétique par unité de volume dans le mode (\vec{k}, \vec{e}) en $[\text{W}/\text{m}^3]$. Le membre de droite contient l'absorption et l'émission stimulée dues à l'onde électromagnétique dans le mode

(\vec{k}, \vec{e}) (respectivement $W_{12, \vec{k}, \vec{e}} = N_1 \frac{I_{\vec{k}, \vec{e}}}{h\nu} \sigma_a$, $W_{21, st, \vec{k}, \vec{e}} = N_2 \frac{I_{\vec{k}, \vec{e}}}{h\nu} \sigma_e$), et la portion de l'émission spontanée émise dans ce mode, $W_{21, sp, \vec{k}, \vec{e}}$. Maintenant, puisque l'émission spontanée se produit dans une très grande quantité de modes, c'est-à-dire dans toutes les directions, sur toute la largeur spectrale de la raie d'émission considérée et dans l'une ou l'autre polarisation, seulement une infime partie de l'émission spontanée se fera dans le mode considéré. Ceci suggère que l'on peut négliger le dernier terme du membre de droite de l'équation (5) puisque :

$$W_{21, sp, \vec{k}, \vec{e}} \ll W_{21, st, \vec{k}, \vec{e}}. \quad (6)$$

À noter que le rapport $W_{21, st, \vec{k}, \vec{e}} / W_{21, sp, \vec{k}, \vec{e}}$ est égal au nombre de photons, q , dans le mode (\vec{k}, \vec{e}) . Donc l'éq. (6) est valide si $q \gg 1$. Cette dernière condition s'appliquera pour un faisceau laser collimaté. En une dimension, nous avons :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{I}_{\vec{k}, \vec{e}} = \frac{\partial I_{\vec{k}, \vec{e}}}{\partial z}. \quad (7)$$

Donc:

$$\frac{\partial I}{\partial z} = h\nu (W_{21, st} - W_{12}), \quad (8)$$

où l'on a laissé tomber l'indice \vec{k}, \vec{e} pour alléger la notation. L'insertion de (1b) et (2b) dans (8) donne:

$$\frac{dI}{dz} = (N_2 - N_1) \sigma_{12} I. \quad (9)$$

Le coefficient d'absorption α [m^{-1}] est défini comme suit [4] :

$$\alpha \equiv \lim_{\Delta z \rightarrow 0} \frac{-\frac{\Delta I}{I}}{\Delta z} = -\frac{1}{I} \frac{dI}{dz}. \quad (10)$$

Le coefficient α est donc le rapport entre la fraction du rayonnement, $-\frac{dI}{I}$, absorbé par une couche d'épaisseur dz et cette dernière. En comparant (9) et (10), on identifie :

$$\alpha = (N_1 - N_2)\sigma_{12}. \quad (11)$$

La solution de l'équation différentielle (10) quand α est constant est une exponentielle:

$$I(z) = I_0 \exp(-\alpha z). \quad (12)$$

Cette dépendance exponentielle de l'intensité qui est absorbée au cours de sa propagation porte le nom de loi de Beer-Lambert [5].

L'équation (11) montre que le coefficient d'absorption est positif si $N_1 > N_2$; dans ce cas, l'onde va s'atténuer; α est négatif si $N_1 < N_2$ et dans ce cas, l'onde au contraire s'amplifie en se propageant. Or, lorsqu'un milieu est à l'équilibre thermodynamique, la population des niveaux est décrite par la loi de Maxwell-Boltzmann [6]; on a alors $\left. \frac{N_2}{N_1} \right|_{\text{équilibre}} = \exp\left(-\frac{E_2 - E_1}{k_B T}\right) < 1$ puisque $E_2 > E_1$, i.e., le niveau deux correspond à un état excité, c'est-à-dire d'énergie plus élevée. *On en conclut que $N_1 > N_2$, et donc le coefficient d'absorption α est toujours positif à l'équilibre thermodynamique.* En revanche, si l'on peut porter le milieu hors de son état d'équilibre thermodynamique, de telle sorte que $N_1 < N_2$, il sera alors possible d'obtenir un coefficient d'absorption négatif, c'est-à-dire un gain net. On parle alors d'*inversion de population*. Le fonctionnement d'un oscillateur laser dépend de l'obtention d'une telle inversion de population. Nous verrons dans les prochains chapitres comment on parvient à obtenir une inversion de population.

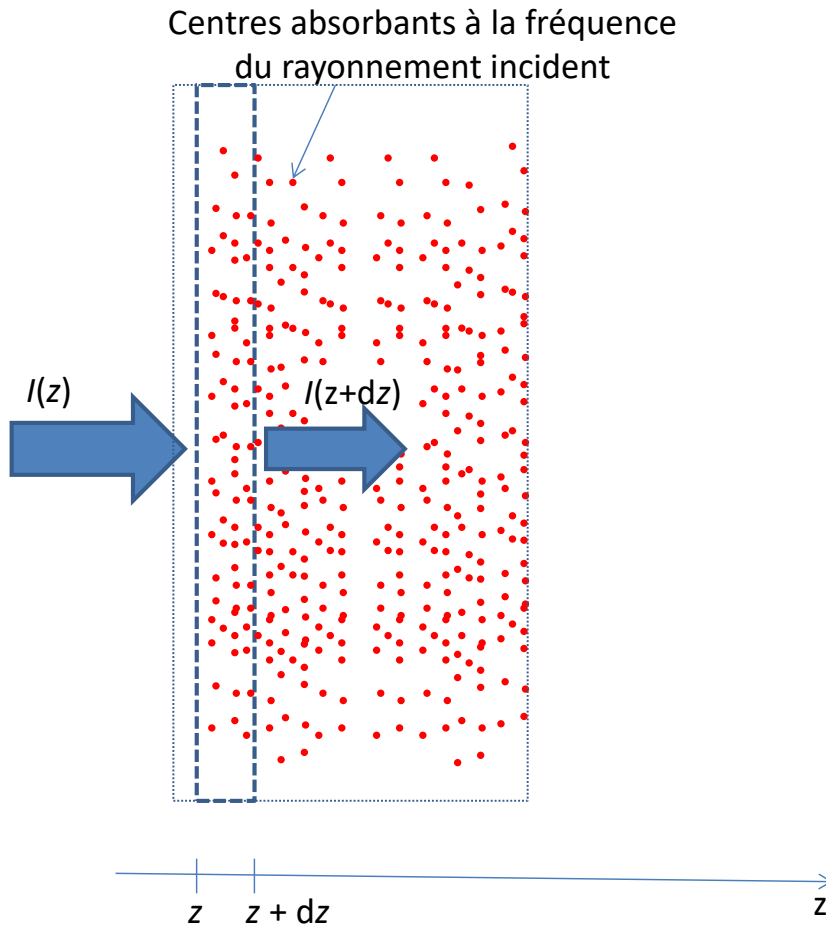


Fig. 1. Schéma illustrant la conservation de l'énergie dans un élément de volume d'épaisseur dz .

6.3 Temps de vie, facteur d'embranchement, rendement de fluorescence et intensité de saturation.

Nous avons défini jusqu'ici une façon de décrire la "force" d'une transition basée sur la notion de section efficace. Cette description est équivalente à l'utilisation des coefficients d'Einstein. On peut dire qu'il n'y a pas de nouvelle physique introduite avec le formalisme vu dans ce chapitre par rapport au formalisme d'Einstein vu au chapitre 5, même si certaines conclusions auxquelles nous sommes arrivées sont nouvelles et vont jouer un rôle primordial dans notre compréhension du fonctionnement des lasers. Dans les deux cas, il s'agit d'une description empirique du phénomène. En effet, le mécanisme physique de la transition n'a pas encore été établi. Nous verrons au chapitre 9 qu'une transition atomique est intimement

reliée aux moments (dipolaire, quadrupolaire,...) électrique et magnétique associés à une transition atomique donnée entre deux niveaux décrits par une fonction d'onde. Le calcul de la probabilité de transition entre deux états quantiques se calcule, pour des intensités pas trop grandes, avec la théorie des perturbations dépendantes du temps en mécanique quantique [7], mais cela sort du cadre de ce cours.

Il existe une autre façon de décrire la force d'une transition; elle utilise la notion d'*intensité saturante* ou encore *paramètre de saturation*, noté I_{sat} . Cette quantité est définie comme l'intensité de l'onde électromagnétique requise pour que les taux d'émission spontanée (dans tous les modes) et d'émission stimulée soient égaux. Or, le taux d'émission spontanée s'écrit :

$$W_{21,sp} = A_{21}N_2. \quad (5.7)$$

Par ailleurs, A_{21} a les unités de l'inverse d'un temps; il est alors naturel de définir $\tau_{rad,21}$ pour une transition $2 \rightarrow 1$ tel que :

$$\frac{1}{\tau_{rad,21}} \equiv A_{21}. \quad (13)$$

$\tau_{rad,21}$ s'appelle le temps de vie radiatif d'une transition. Dans l'équation (13), on a ajouté l'indice 21 à τ_{rad} de manière à rappeler qu'il s'agit d'un taux relié à une transition faisant intervenir deux niveaux atomiques particuliers, appelés 1 et 2. Il arrive souvent que le niveau supérieur (le niveau 2) puisse relaxer par émission spontanée dans plusieurs niveaux différents. Par exemple, si l'atome peut relaxer dans deux niveaux, que l'on nommera 0 et 1, alors le taux d'émission spontanée total depuis le niveau 2 s'écrira :

$W_{2,sp} = W_{20,sp} + W_{21,sp}$, de sorte que :

$$\frac{1}{\tau_{rad,2}} \equiv \frac{1}{\tau_{rad,20}} + \frac{1}{\tau_{rad,21}}. \quad (14)$$

Le taux d'émission spontanée τ_{rad}^{-1} est égal à la somme des taux d'émission spontanée associés à chacun des niveaux vers lequel l'état excité peut relaxer. C'est le taux total, ou encore son inverse, le temps τ_{rad} , associé à toutes les transitions que l'on mesure expérimentalement bien qu'il arrive que l'on fournisse des valeurs pour les différentes paires de niveaux considérés, ce qui peut engendrer de la confusion. Il est préférable de spécifier la durée de vie totale τ_{rad} et de spécifier la proportion des photons émis dans tous les niveaux, que l'on appelle les taux d'embranchement, β . La somme des taux d'embranchement sur tous les niveaux d'arrivée est égale à un. Pour l'exemple donné ci-haut, le taux d'embranchement associé à la transition du niveau deux vers le niveau un est donné par :

$$\beta_{21} = \tau_{\text{rad}} / \tau_{\text{rad},21}, \quad (15a)$$

et de façon similaire, nous aurons :

$$\beta_{20} = \tau_{\text{rad}} / \tau_{\text{rad},20}, \quad (15b)$$

avec $\beta_{21} + \beta_{20} = 1$. On montre à la Fig. 2 un exemple de la relaxation radiative du néodyme trivalent vers plusieurs sous-niveaux.

On définit parfois τ_{rad} et $\tau_{\text{non-rad}}$ tel que $1/\tau_{\text{rad}}$ est le taux radiatif d'une transition par émission spontanée d'un photon et $1/\tau_{\text{non-rad}}$ un taux de transition non-radiatif. Ce dernier correspond à toute transition entre niveaux atomiques se produisant sans émission de photon; dans ce cas, l'énergie restituée est la plupart du temps transformée en chaleur. Le temps de vie réel τ_f s'écrit alors :

$$\frac{1}{\tau_f} = \frac{1}{\tau_{\text{rad}}} + \frac{1}{\tau_{\text{non-rad}}} \quad (16)$$

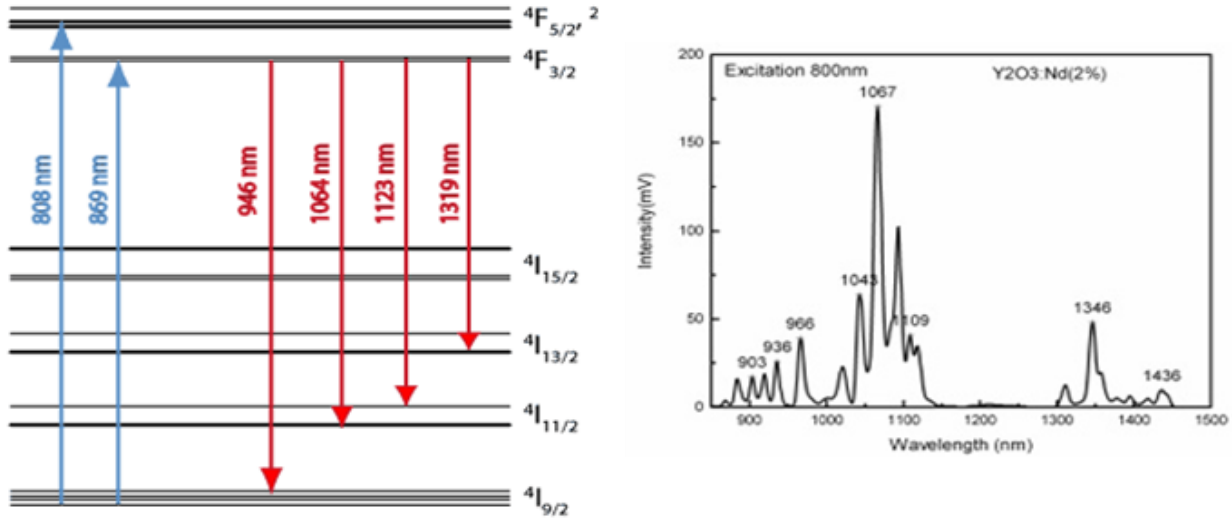


Fig. 2 Relaxation radiative du Nd³⁺ depuis letat metastable ⁴F_{3/2}. Ce niveau emet quatre raies distinctes correspondant a des transitions vers les niveaux ⁴I_{15/2}, ⁴I_{13/2}, ⁴I_{11/2}, et ⁴I_{9/2}, montrees en rouge sur la figure. La somme des quatre taux dembranchement doit donner un. Les fleches en bleu correspondent aux transitions permettant de peupler le niveau metastable ⁴F_{3/2}. Les spectres de luminescence du Nd³⁺ dope dans lyttrine Y₂O₃ vers les niveaux ⁴I_{13/2}, ⁴I_{11/2} et ⁴I_{9/2} sont montres a droite.

A partir de lequation (16), on peut definir le rendement quantique de fluorescence η_f par la probabilite quune transition se fasse de faon radiative. On ecrit alors cette probabilite comme :

$$\eta_f = \frac{\tau_f}{\tau_{rad}} \tag{17}$$

Ensuite, on definit lintensite de saturation I_{sat} comme lintensite necessaire pour que les taux demission stimulee et spontanee soient egaux, i.e., $W_{21,st} = W_{21,sp}$. On trouve alors:

$$I_{sat} = \frac{h\nu}{\tau_{rad}\sigma} \tag{18}$$

Lintensite saturante est dautant plus basse que la section efficace est elevee ou que le temps de vie du niveau excite est long. Puisque les sections efficaces dabsorption et demission sont egales, les intensites saturantes pour labsorption et lemission a une longueur donde donnee sont egales [8].

6.4 Relation de Füchtbauer-Ladenburg

Au chapitre 5, nous avons vu que l'émission spontanée et l'émission stimulée sont reliées. En effet, nous avons :

$$\frac{A_{21}}{B} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \quad (5.17)$$

En remplaçant les expressions (4) et (13) dans (5.17), on trouve :

$$\sigma_e(\nu) = \frac{1}{\tau_{rad}} \frac{c^2}{8\pi\nu^2} g(\nu) \quad (19)$$

Cette expression s'appelle la relation de Füchtbauer-Ladenburg. Par rapport à la relation (5.17) déduite par Einstein, elle n'apporte rien de nouveau, si ce n'est qu'elle exprime (5.17) en fonction de quantités plus facilement accessibles expérimentalement. En effet, si on prend suffisamment de précautions, les quantités τ et $g(\nu)$ peuvent être estimées. Reste à savoir si τ_{rad} est égal à τ , ce qui sera à peu près vrai à température normale pour un matériau luminescent de haute qualité, c'est-à-dire dépourvu de défauts susceptibles de causer des relaxations non-radiatives. Cette relation est utile pour calculer le spectre $\sigma_e(\nu)$ à partir de grandeurs facilement mesurables expérimentalement que sont les fonctions forme de raie $g(\nu)$ et le temps de vie dans le niveau excité τ_{rad} . Il faut noter que ce dernier est facilement accessible seulement si on connaît le rendement quantique de fluorescence! De plus, il faut prendre garde à la réabsorption de la fluorescence dans le matériau, qui tend à allonger le temps caractéristique de déclin de la courbe de luminescence [9].

6.5 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons d'abord défini les sections efficaces spectroscopiques puis exprimé les taux d'absorption et d'émission stimulée en fonction de celles-ci et de l'intensité I d'une onde électromagnétique qui interagit avec un ensemble d'atomes :

$$W_{12} = N_1 \frac{I}{h\nu} \sigma_a \quad (1b)$$

et

$$W_{21,sp} = N_2 \frac{I}{h\nu} \sigma_e \quad (2b)$$

On a par la suite montré que ses sections efficaces sont égales et peuvent être reliées facilement au coefficient d'Einstein B , et à la fonction forme de raie $g(\nu)$:

$$\sigma_a(\nu) = \sigma_e(\nu) = B \frac{h\nu}{c} g(\nu) \quad (4)$$

Par la suite nous avons défini le coefficient d'absorption α , que nous avons relié à et aux populations des niveaux considérés :

$$\alpha = (N_1 - N_2) \sigma_{12} \quad (11)$$

Nous avons défini le temps de vie radiatif d'une transition et l'avons relié au coefficient d'Einstein, A :

$$\frac{1}{\tau_{rad,21}} \equiv A_{21} \quad (13)$$

Nous avons aussi défini les taux de transition non-radiatif, τ_{nr} , les taux d'embranchement β et le paramètre d'intensité saturante. Finalement, nous avons démontré la relation de Füchtbauer-Ladenburg :

$$\sigma_e(\nu) = \frac{1}{\tau_{rad}} \frac{c^2}{8\pi\nu^2} g(\nu) \quad (19)$$

Cette relation est strictement équivalente à la relation d'Einstein :

$$\frac{A_{21}}{B} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \quad (5.17)$$

Annexe 1 : Équations de débit pour un système à deux niveaux d'énergie

L'étude de la cinétique d'un système à deux niveaux permet d'apporter un éclairage différent à la signification physique du paramètre de saturation I_{sat} . On suppose que les deux niveaux sont très distants énergétiquement à l'échelle de $k_B T$, de sorte que le niveau N_2 est normalement vide et ne se peuple que par l'absorption du rayonnement incident. On suppose que le niveau deux peut relaxer vers le niveau 1 par émission stimulée ou spontanée. On suppose aussi que la section efficace, σ , entre ces deux niveaux est isotrope, i.e., ne dépend pas de la direction et la polarisation du mode (\vec{k}, \vec{e}) . On néglige les relaxations non-radiatives, i.e., $1/\tau_{\text{non-rad}} = 0$. Le taux de relaxation à partir du niveau excité peut alors s'écrire sous la forme :

$$\frac{dN_2}{dt} = \frac{I\sigma}{h\nu}(N_1 - N_2) - \frac{N_2}{\tau_{\text{rad}}} \quad (20)$$

En utilisant (18) et la conservation du nombre de centres, i.e., $N = N_1 + N_2$, on trouve :

$$\frac{dN_2}{dt} = \frac{1}{\tau_{\text{rad}}} \left(\frac{I}{I_{\text{sat}}}(N - 2N_2) - N_2 \right) \quad (21)$$

En régime stationnaire, on a : $\frac{dN_2}{dt} = 0$, d'où l'on tire :

$$N_2 = \frac{N}{\frac{I_{\text{sat}}}{I} + 2} \quad (22)$$

On constate que la population N_2 est nulle en l'absence de rayonnement incident. La fraction de centres qui sont dans l'état excité augmente avec I ; I_{sat} peut s'interpréter simplement comme étant de l'ordre de l'intensité requise pour que N_2 atteigne une "fraction appréciable" de N (ici, $N_2 = N/3$).

Par ailleurs, on voit à partir de (21) que, quelle que soit l'intensité incidente, N_2 ne dépassera jamais $N/2$. Ceci implique qu'il n'est pas possible de créer une inversion de population dans un système à deux niveaux ou, à tout le moins, dans un système où seulement deux niveaux interviennent. Nous verrons au chapitre 10 que la quasi-totalité des lasers utilisent au moins trois niveaux pour créer une inversion de population.

Note : On peut montrer qu'il est possible de créer une inversion de population avec un système à deux niveaux en interaction avec un rayonnement en résonance avec celui-ci à condition que les effets de décohérence de la fonction d'onde atomique soient négligeables à l'échelle des temps de transition. Avec la théorie des perturbations dépendantes du temps, on peut alors montrer que l'atome peut être dans une superposition des deux états et que la probabilité de présence dans un niveau oscille dans le temps entre zéro et un à la fréquence de Rabi. La mise en évidence de telles oscillations implique l'utilisation de lasers très intenses, et à ce jour, cet effet n'est pas utilisé dans les lasers commerciaux pour créer l'inversion de population dans un milieu actif. L'équation de débit des niveaux (éq. 20) néglige la possibilité d'une superposition des fonctions d'ondes des deux états. Ceci est justifié par le temps de décohérence très bref d'un système atomique à l'état solide à l'échelle des autres temps caractéristiques du problème.

Annexe 2: établissement de la formule de FL à partir de l'équation (5.19).

Au chapitre 5, nous avons établi le résultat important suivant (5.19):

$$\frac{\text{taux d'émission stimulée dans un mode}}{\text{taux d'émission spontanée dans un mode}} = \text{nombre de photons dans un mode} \quad (5.19)$$

Cette loi suggère qu'il existe une relation étroite entre la section efficace et le temps de vie radiatif d'un niveau. Ceci est en effet le cas et nous allons montrer que la relation (19) découle directement de (5.19).

D'abord, le taux d'émission stimulée par unité de temps et de volume à une fréquence ν est donné par :

$$W_{21,st} = N_2 \frac{I}{h\nu} \sigma_e \quad [\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}] \quad (2b)$$

Ensuite, le taux d'émission spontanée par unité de temps, de volume et par unité de bande de fréquence est donné par :

$$\frac{dW_{21,sp}}{dv} = \frac{N_2}{\tau_{rad}} g(\nu) \quad [\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1}], \quad (23)$$

où $g(\nu)$ est la fonction profil de raie. Maintenant, nous avons vu que la densité de modes par unité de volume et de bande passante dans le vide est donnée par :

$$\rho(\nu) = \frac{8\pi\nu^2}{c^3} \quad [\text{mode} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{Hz}^{-1}] \quad (24)$$

On en déduit que le taux d'émission spontanée par mode par seconde est donné par :

$$\frac{\frac{dW_{21,sp}}{dv}}{\rho(\nu)} = \frac{\frac{N_2}{\tau_{rad}} g(\nu)}{\frac{8\pi\nu^2}{c^3}} \quad [\text{par mode et par seconde}] \quad (25)$$

Maintenant, le nombre de photons par unité de volume, η , est donné par :

$$\eta = \frac{I}{h\nu c} \quad (26)$$

où l'on a supposé l'indice du milieu égal à un, $n=1$. Finalement, l'équation (5.19) peut se réécrire en utilisant les équations 2b, 25, et 26:

$$W_{21,st} = N_2 \frac{I}{h\nu} \sigma_e = \frac{I}{h\nu c} \left(\frac{\frac{N_2}{\tau_{rad}} g(\nu)}{\frac{8\pi\nu^2}{c^3}} \right) \quad (27)$$

Après simplification, on retrouve l'équation (19).

Questions

1. Vérifier le calcul menant à l'équation (4) et la cohérence dimensionnelle de celle-ci.
2. Discuter de la validité de l'hypothèse exprimée par l'équation (6). Vous pouvez vous aider d'un exemple.
3. Établir la relation qui existe entre α et l'indice de réfraction complexe du milieu $\tilde{n} = n - ik$.
4. Justifier la forme de l'équation (16), i.e., la pertinence de faire une addition des inverses des τ .
5. Discuter de la validité de l'assertion suivante : τ_{rad}^{-1} peut s'interpréter comme la probabilité d'émission spontanée par unité de temps d'un centre placé dans son état excité.
6. Proposer une expérience pour mesurer le temps de vie τ d'un niveau excité.
7. Si le temps de vie d'un niveau excité est $\tau_{\text{rad}}=250 \mu\text{s}$ et que ce dernier peut se désexciter avec une probabilité de 1/3 et 2/3 vers les niveaux 0 et 1 respectivement, quel sont les temps $\tau_{\text{rad},20}$ et $\tau_{\text{rad},21}$ et les taux d'embranchement qui leur sont associés?
8. À la question 7, est-ce que la puissance lumineuse irradiée dans chacune des deux bandes spectrales d'émission spontanée sera dans le rapport 2 pour 1? Justifier votre réponse.
9. Tracer l'allure de N_2 en fonction I pour un système à deux niveaux. Normaliser l'axe des abscisses par I_{sat} (Cf. Annexe 1) et normaliser l'axe vertical par $N=N_1+N_2$.
10. Tracer l'allure de $\alpha(\nu)$ en fonction de I pour un système à deux niveaux. ν est la fréquence de résonance. Normaliser l'axe des abscisses par I_{sat} .
11. Supposer qu'une transition possède un profil de raie Lorentzien centré en ν_0 et de largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$. Tracer l'allure de I_{sat} en fonction de la fréquence en prenant soin d'indiquer $\Delta\nu$ et ν_0 .
12. Établir la relation générale de Füchtbauer-Ladenburg dans le cas d'un indice n différent de un.

Références et commentaires

¹ La section efficace spectroscopique est une propriété d'une transition donnée. Plus tard, nous ferons la distinction entre les sections efficaces dites "spectroscopique" et section efficace "effective".

² Voir José-Philippe Pérez, *Thermodynamique : Fondements et applications*, 3^{ème} édition Masson Sciences, 2001, chapitre 4 ou encore F. Reif, *Fundamentals of statistical and thermal physics*, McGraw-Hill, 1965, chapitres 12 et 13.

³ On suppose ici une onde progressive et non une onde stationnaire, auquel cas il faudrait multiplier I par deux.

⁴ Le coefficient α est parfois appelé le coefficient d'extinction.

⁵ Voir Pierre Bouguer, *Essai d'optique sur la gradation de la lumière*, Paris, Claude Jombert, 1729 ; J.H. Lambert, *Photometria, sive de mensura et gradibus luminis, colorum et umbrae*, Sumptibus Vidae Eberhardi Klett, 1760 et A. Beer, « Bestimmung der Absorption des rothen Lichts in farbigen Flüssigkeiten », *Annalen der Physik und Chemie*, vol. 86, 1852, p. 78-88.

⁶ F. Reif, *Fundamentals of statistical and thermal physics*, McGraw-Hill, 1965, chap. 9.

⁷ Voir C. Cohen-Tanoudji, B. Diu, et F. Laloë, *Mécanique quantique II*, éd Hermann chapitre 13 et complément A du même chapitre.

⁸ On verra au chapitre 8 la définition des sections efficaces dites effectives. Dans ce cas, les section efficaces d'absorption et d'émission peuvent différer et il en est de même des paramètres de saturation I_{sat} en absorption et en émission.

⁹ À noter que la relation FL est surtout utilisée pour calculer le spectre de section efficace effective d'émission, une fois le temps de vie radiatif et le spectre de luminescence mesurés. Nous verrons au chapitre 8 ce qu'est une section efficace effective (par opposition à section efficace spectroscopique vue dans ce chapitre) et on démontrera la validité de l'utilisation de FL pour le cas d'une section efficace effective d'émission.