

« Two-photon absorption laser induced fluorescence » (TALIF) : l'hypothèse de fluorescence proportionnelle à la section efficace à deux photons est-elle utilisée à tort et à travers ?

C. Blondel et C. Drag

Laboratoire de Physique des plasmas, C.N.R.S., Observatoire de Paris, Sorbonne Université, Université Paris-Saclay, École polytechnique, Institut polytechnique de Paris, route de Saclay, F-91128 Palaiseau
Courriel : christophe.blondel@lpp.polytechnique.fr

Dans la méthode TALIF, qui sert, dans les plasmas froids, à détecter certaines espèces atomiques (typiquement l'oxygène) voire à en mesurer la densité, on suppose très généralement que la fluorescence est, à chaque instant (et sauf saturation), proportionnelle à la section efficace généralisée d'absorption à deux photons et au carré de l'intensité d'excitation.

Or la dynamique atomique interne ne met pas seulement en jeu des populations mais aussi des cohérences. Et même dans le cas où ces cohérences sont très rapidement amorties, on ne peut jamais établir instantanément un équilibre entre les populations et le champ exciteur.

La figure 1 montre, en guise d'exemple dans le xénon (couramment utilisé pour calibrer les mesures de densité d'oxygène), comment, même dans le cas d'une impulsion relativement lente (de plusieurs ns), l'absorption instantanée dépend du modèle utilisé. L'hypothèse de fluorescence instantanément proportionnelle au carré du flux lumineux apparaît loin d'être celle qui produit l'absorption instantanée la plus ressemblante à celle que prévoit une modélisation rigoureuse. On examinera si les différences calculées peuvent avoir des conséquences quantitatives dans des cas réels.

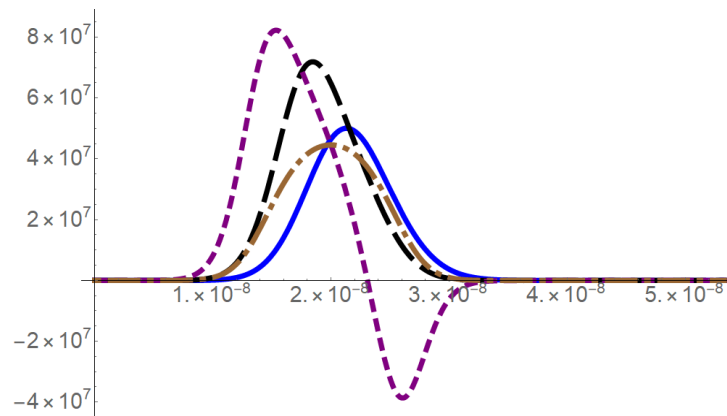


Figure 1 : calculs, selon 4 modèles différents [1], du taux d'absorption instantané, en fonction du temps (s), par un atome de xénon excité à deux photons, à résonance, vers le niveau $6p'[1/2]_0$, avec l'amortissement (encore léger) des cohérences donné par une pression de 1000 Pa de xénon pur. L'unité utilisée en ordonnée pour mesurer l'énergie absorbée par seconde est l'énergie de la transition atomique. L'impulsion laser, de durée caractéristique 6 ns, est supposée avoir une énergie d'un millijoule. La courbe continue est le résultat de l'intégration des équations de Bloch optiques. Les tirets longs donnent la description de l'absorption par une équation ne faisant intervenir que des populations. Le point-tireté donne la puissance dissipée par fluorescence dans le modèle quasi-statique où les populations seraient à chaque instant à l'équilibre avec le flux incident. Les tirets courts montrent la puissance qu'il faudrait absorber instantanément au faisceau lumineux incident pour réaliser cet hypothétique équilibre quasi-statique. Ces deux dernières puissances coïncident à l'instant où la population du niveau excité passe par son maximum et leurs intégrales temporelles sont égales.

Référence

[1] C. Drag, F. Marmuse & C. Blondel, Plasma Sources Sci. Technol. **30**, 075026 (2021)