



Spectroscopie vibrationnelle à deux photons de l'ion H_2^+ : développement d'une source laser à 9.166 μm .



Franck Bielsa

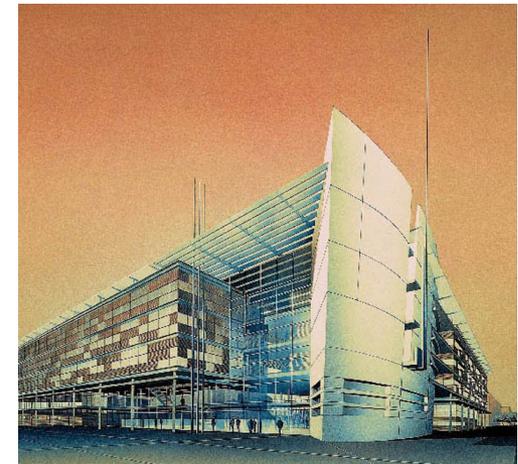
Laboratoire Kastler Brossel (UPMC/ENS)



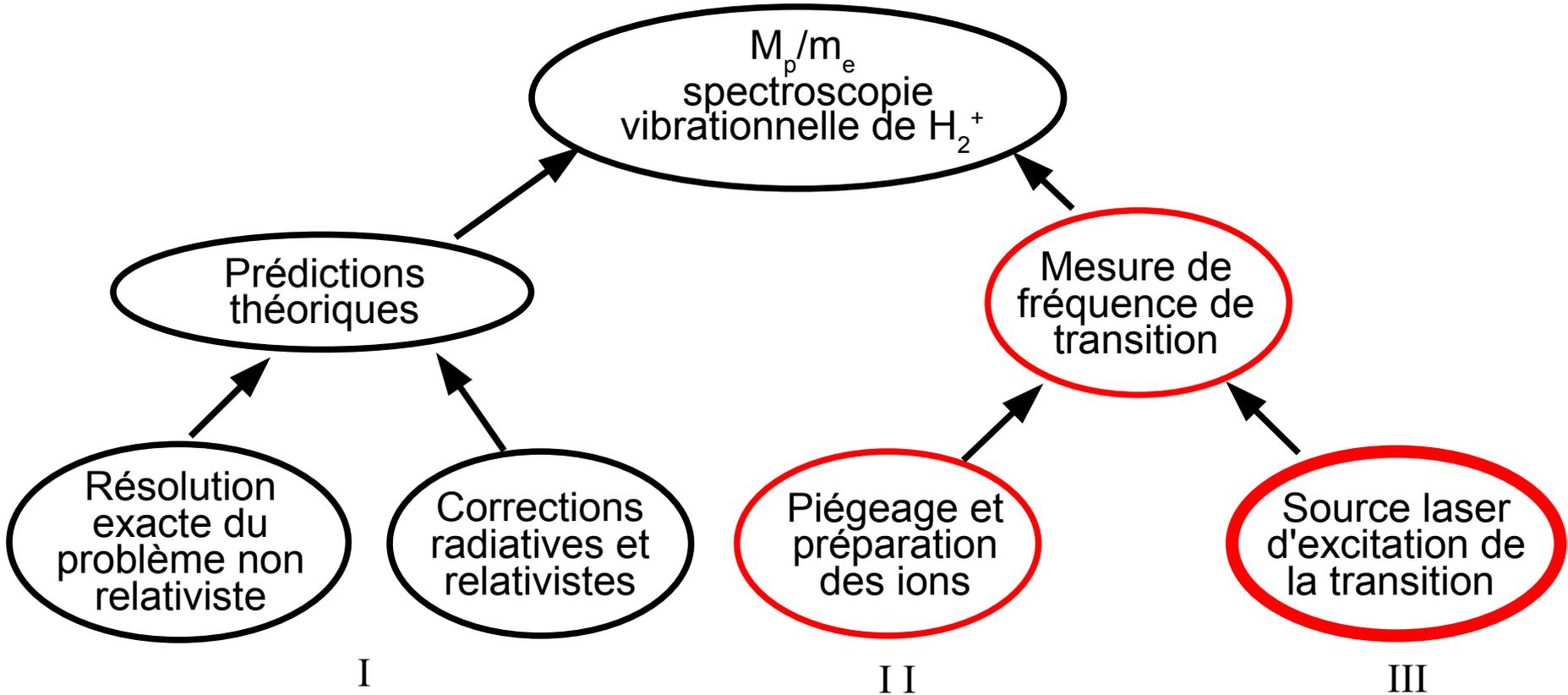
Université d'Evry Val d'Essonne



Université Paris VI



Directeur de thèse : Laurent Hilico





Métrologie du rapport de masse M_p/m_e



• Motivations :

- Constante de Rydberg
- Constante de structure fine α
- Test de variation des constantes fondamentales

• Valeur actuelle :

- Masse du proton: fréquence cyclotron de $^{12}\text{C}^{4+}$ en piège de Penning (Van Dyck (2001)):

$$\frac{M_p}{m_u} = 1.007\,276\,466\,77 (10) \quad 1.0 \cdot 10^{-10}$$

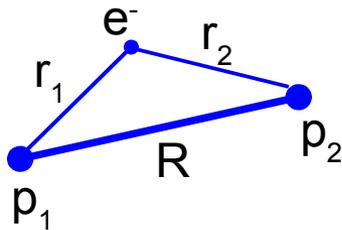
- Masse de l'électron: fréquence de Larmor et fréquence cyclotron de $^{12}\text{C}^{5+}$ et $^{16}\text{O}^{7+}$ en piège de Penning (Werth 2003) :

$$\frac{m_e}{m_u} = 0.000\,548\,579\,909\,43 (23) \quad 4.2 \cdot 10^{-10}$$

Résultat (CODATA 2006):	$M_p/m_e = 1836.152\,672\,47 (80)$	$4.3 \cdot 10^{-10}$
-------------------------	------------------------------------	----------------------

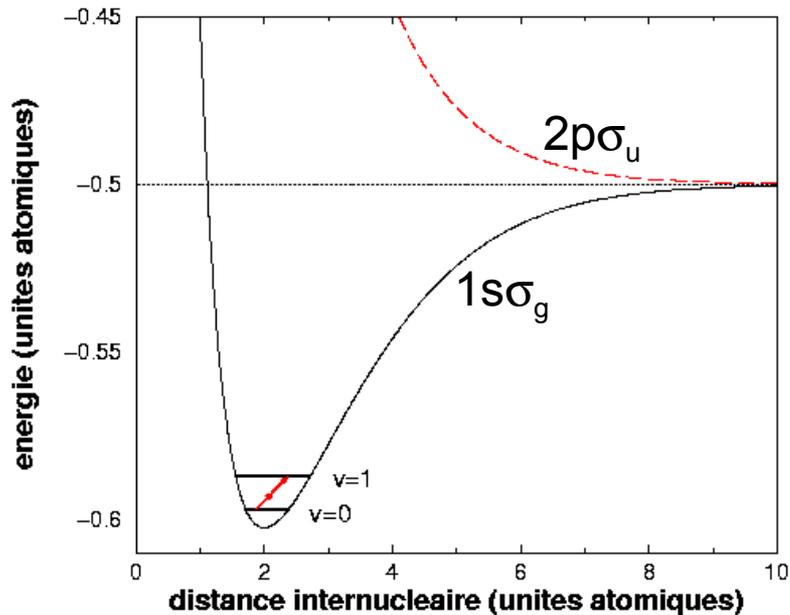


Nouvelle méthode de détermination



Hamiltonien de H_2^+ en unités atomiques ($M = M_p/m_e$)

$$H = \frac{P_1^2}{2M} + \frac{P_2^2}{2M} + \frac{P_3^2}{2} + \frac{1}{R} - \frac{1}{r_1} - \frac{1}{r_2}$$



nombre quantiques
L: rotationnel
v: vibrationnel

Fréquence de vibration :

$$v \propto \frac{R_\infty}{\sqrt{M}}$$
$$\Rightarrow \frac{\Delta M}{M} = 2 \frac{\Delta v}{v}$$



Intérêts de la méthode



- Spectroscopie à deux photons sans effet Doppler : mesure de fréquence optique (9-10 μm)

Précision relative potentiellement supérieure à 10^{-10} .

- Mesure directe du rapport de masse M_p/m_e .
- Indépendante des mesures précédentes.



Prédictions théoriques



I. Prédictions théoriques



Transitions vibrationnelles dans H_2^+

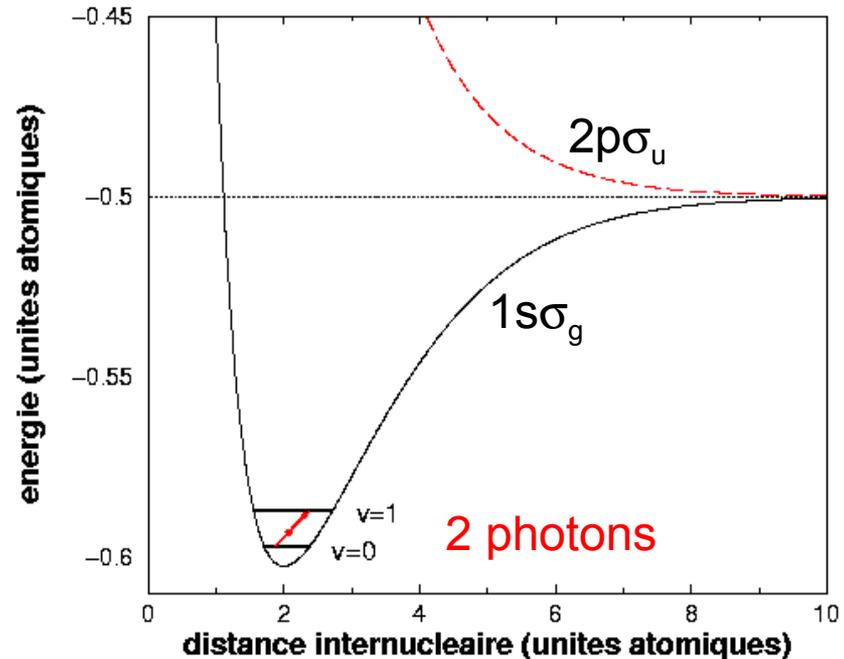
Moment cinétique : L, l_1, l_2, S_e

Spin nucléaire $I=0$ ou 1

moment cinétique total : J

L pair $\Rightarrow I=0$

L impair $\Rightarrow I=1$



- Transitions dipolaires électriques à un photon ($|\Delta L|=1$) interdites:
 - niveaux métastables,
 - pas de fluorescence.
- Transitions dipolaires électriques à deux photons: $|\Delta L|=0$ ou 2 .
- La structure des raies de L pair est plus simple que celle des raies de L impair.



Fréquences de transitions

➤Energie des niveaux ro-vibrationnels ^(1,2,3) :

$$E = E_0(\nu, L) + E_{si}(\nu, L) + E_{hfs}(\nu, L, s_e, I, J)$$

E_0 : énergies non relativistes

E_{si} : corrections relativistes et radiatives indépendantes du spin (jusqu'à l'ordre α^5)

E_{hfs} : corrections de structure hyperfine (qq kHz à qq dizaines de kHz)

➔Fréquences de transition à deux photons sans la structure hyperfine:

Transitions	Fréquences ν_0 (MHz)	Incertitudes (MHz)	Ecart raie CO ₂ (MHz)
(L=0, v=0) → (L'=0, v'=1)	32 844 161,872	0,047	-3006,87 (9R52)
(L=1, v=0) → (L'=1, v'=1)	32 798 213,650	0,052	4374,72 (9R48)
(L=2, v=0) → (L'=2, v'=1)	32 706 607,824	0,052	-1654,62 (9R42)
(L=3, v=0) → (L'=3, v'=1)	32 569 919,612	0,051	-13617,03 (9R34)

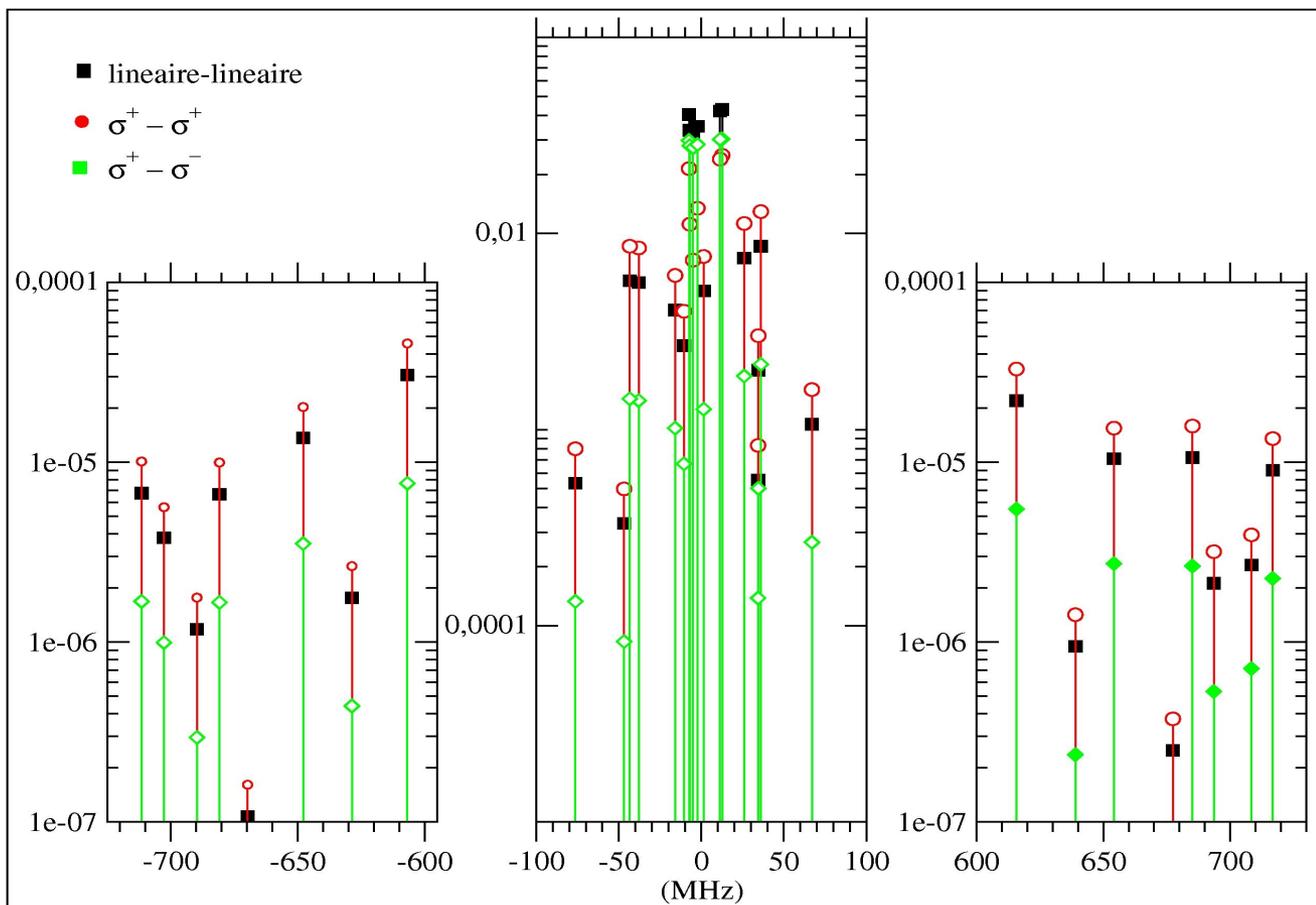
¹V.I. Korobov, Phys. Rev. A **73**, 024502 (2006)

²V.I. Korobov, Phys. Rev. A **74**, 052506 (2006)

³V.I. Korobov, L. Hilico et J. Ph. Karr, Phys. Rev. A **74**, 040502(R) (2006)

$L=3, v=0 \rightarrow L=3, v=1$

$\lambda=9.205\mu\text{m}$

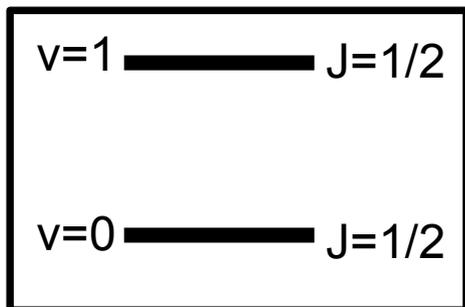




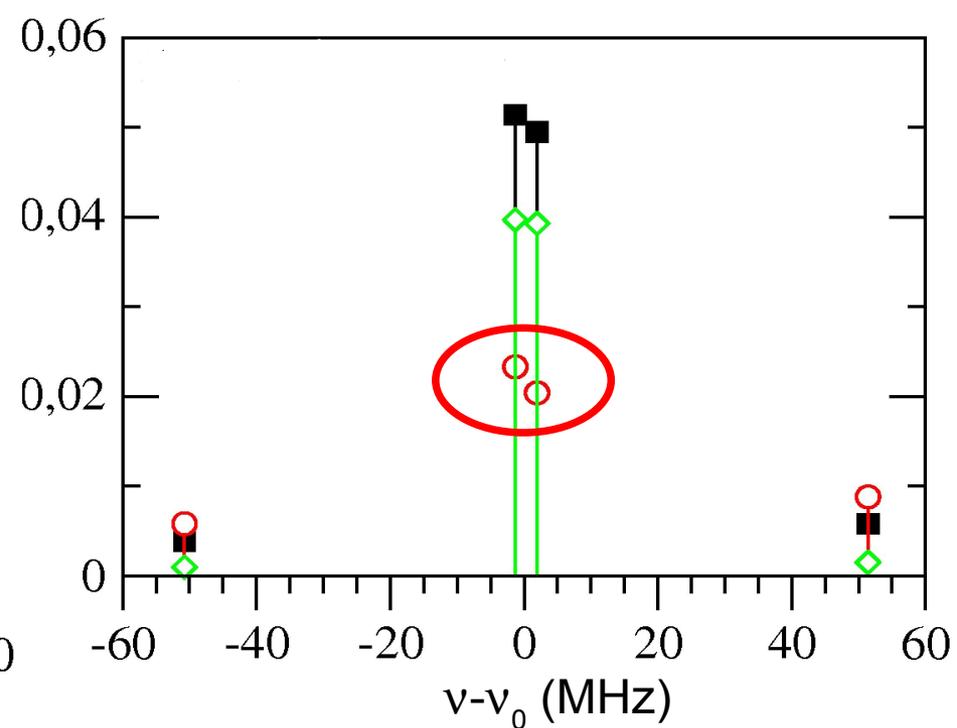
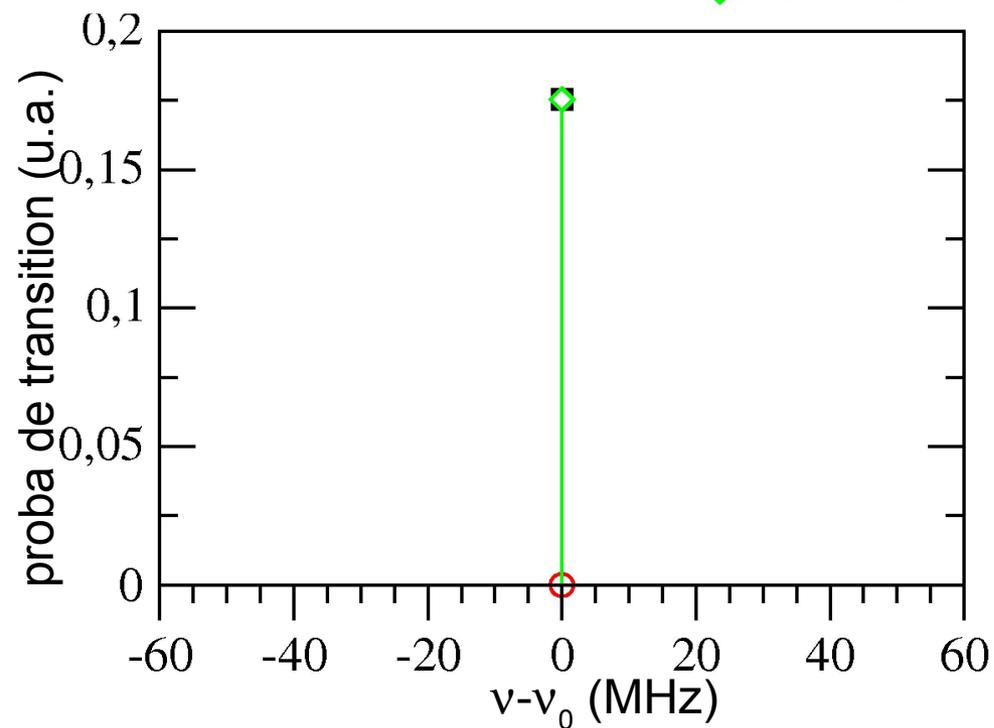
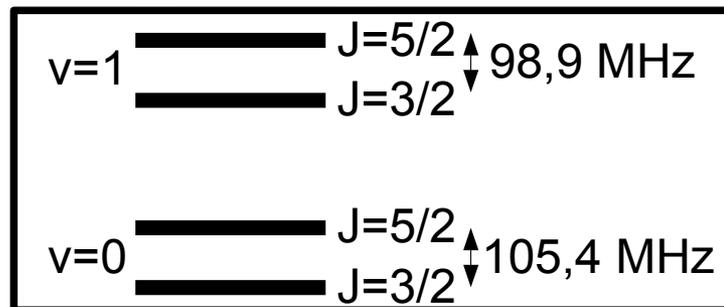
Spectre de transition: L pair

$L=0, v=0 \rightarrow L=0, v=1$ $\lambda=9.128\mu\text{m}$

$L=2, v=0 \rightarrow L=2, v=1$ $\lambda=9.166\mu\text{m}$



■ lineaire - lineaire
○ $\sigma^+ - \sigma^+$
◇ $\sigma^+ - \sigma^-$



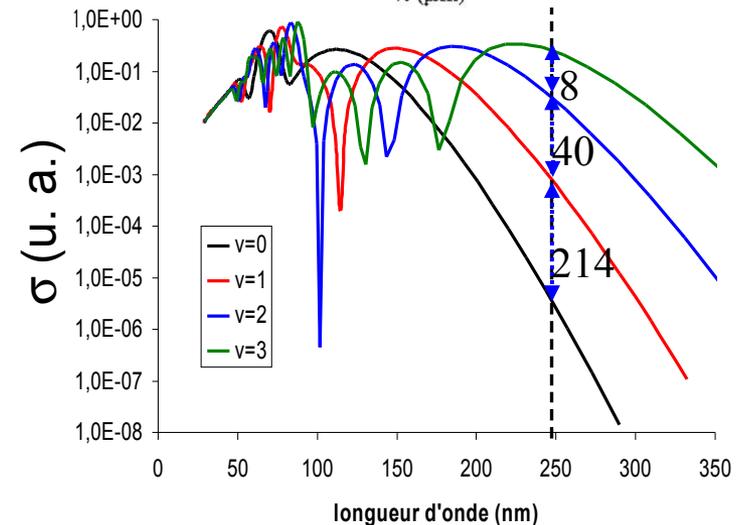
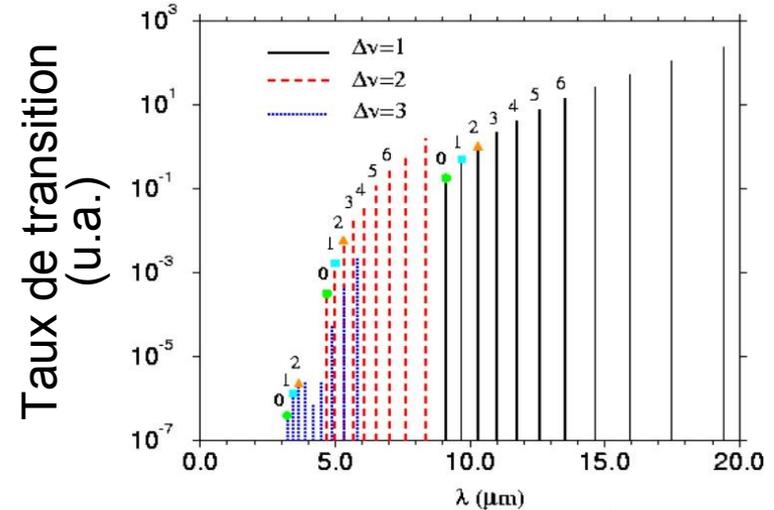


Choix de la transition

- Probabilité de transition : $\Delta v=1$
- Détection de la transition par photodissociation sélective : $v=0$

- Structure hyperfine
 - Populations des niveaux
 - Longueur d'onde : $L=2$
- } L pair

Transition choisie:
 $(L=2, v=0) \rightarrow (L'=2, v'=1)$





Ordres de grandeur

Transition $(L=2, v=0) \rightarrow (L'=2, v'=1)$:

prédite à 32 706 607,824(50) MHz (9,166 μm)

Corrections hyperfines : $\left\{ \begin{array}{l} +1,943 \text{ MHz} \\ -1,295 \text{ MHz} \end{array} \right.$

➤ Flux : 2 W/mm²

➤ largeur laser : 3 kHz

→ Taux de transition : $\Gamma_{\infty} \frac{I^2}{\gamma_l} Q^2 \sim 0,7 \text{ s}^{-1}$

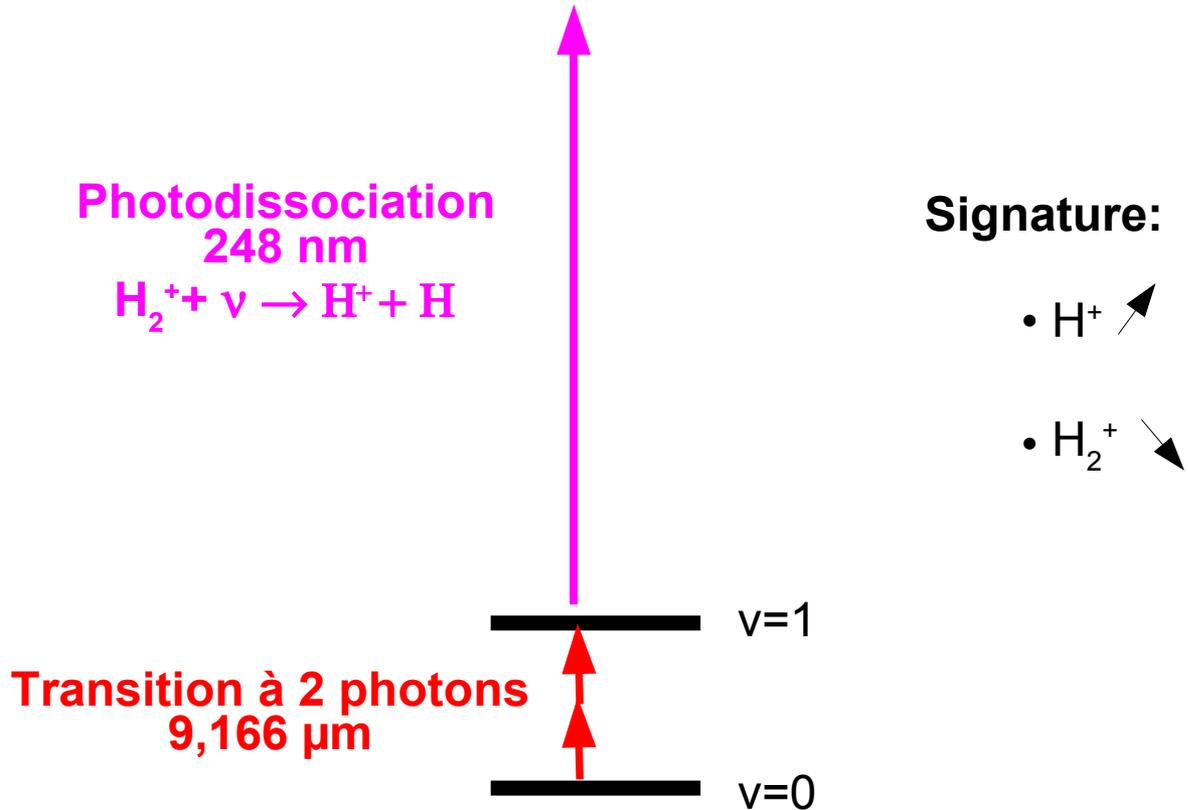
→ cavité optique de surtension (laser 50 mW)

→ ions piégés



Méthode expérimentale

•REMPD 2+1' (Resonance Enhanced Multi-photon Dissociation)



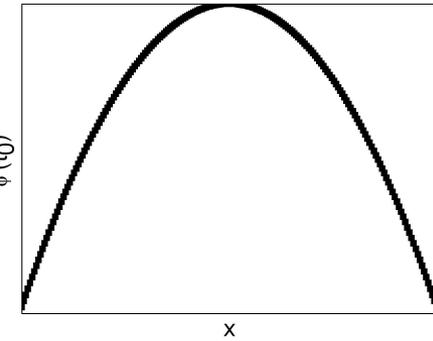
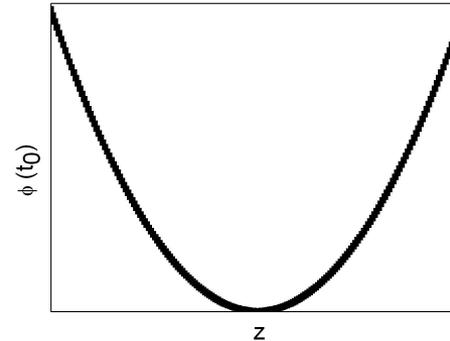
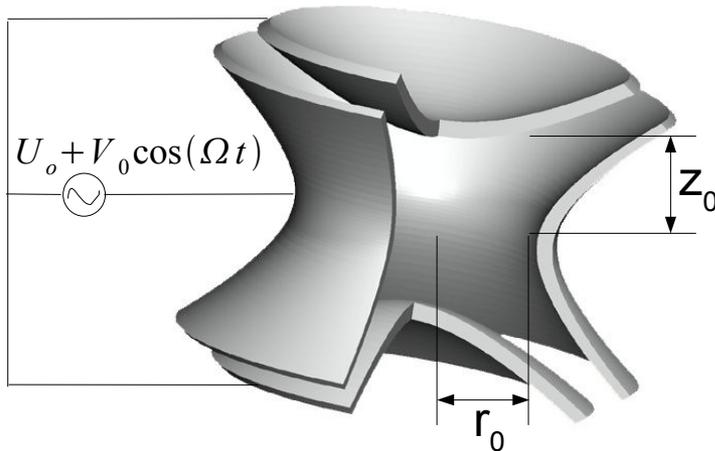


Piégeage et préparations des ions dans $v=0$



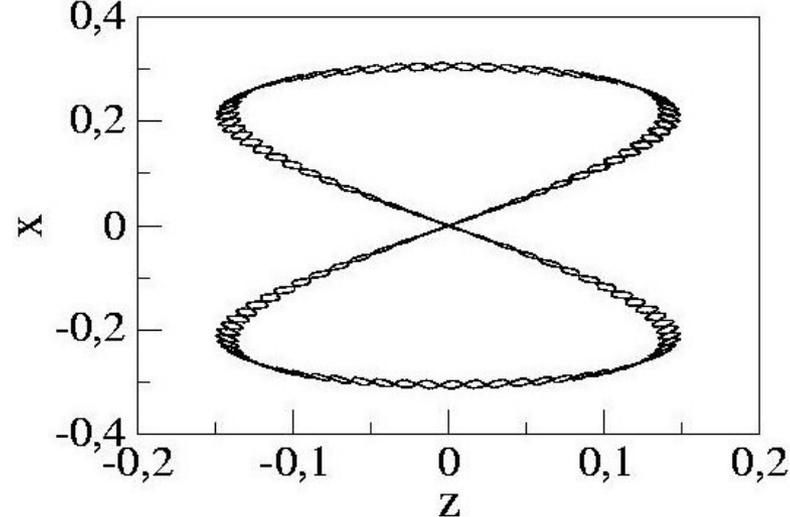
II. Piégeage et préparation des ions

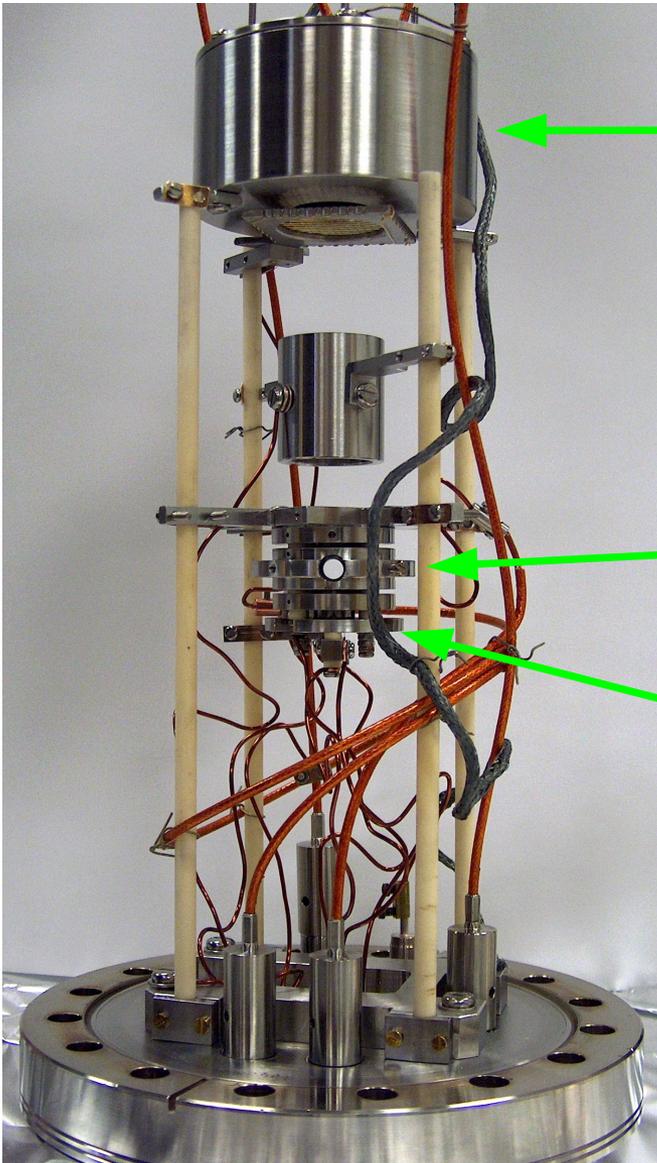
- Piégeage
- Photodissociation



Potentiel:
$$\phi(t) = \frac{U_o + V_o \cos(\Omega t)}{2d^2} (2z^2 - x^2 - y^2)$$

Trajectoire stable:



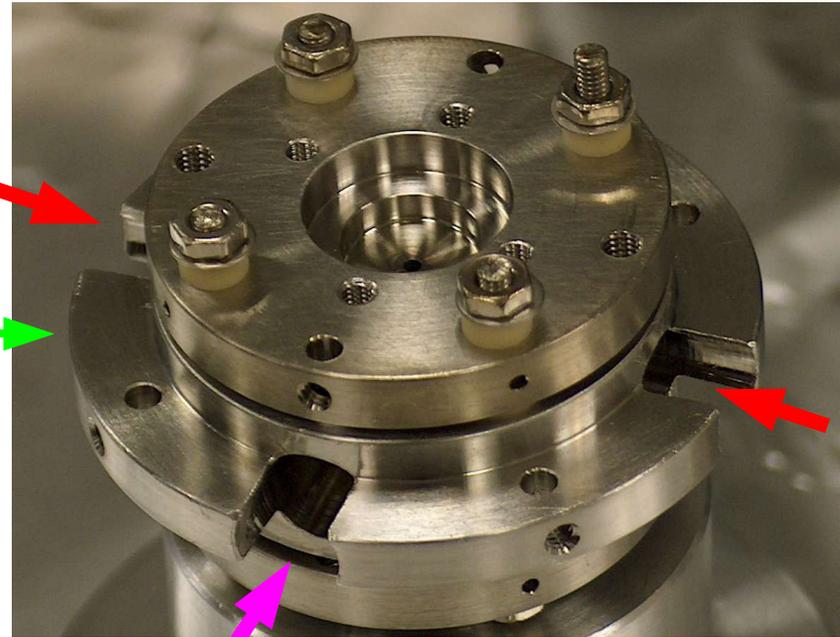


MCP

12 cm
Temps de vol

Piège

Canon à électrons



IR

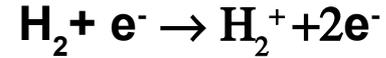
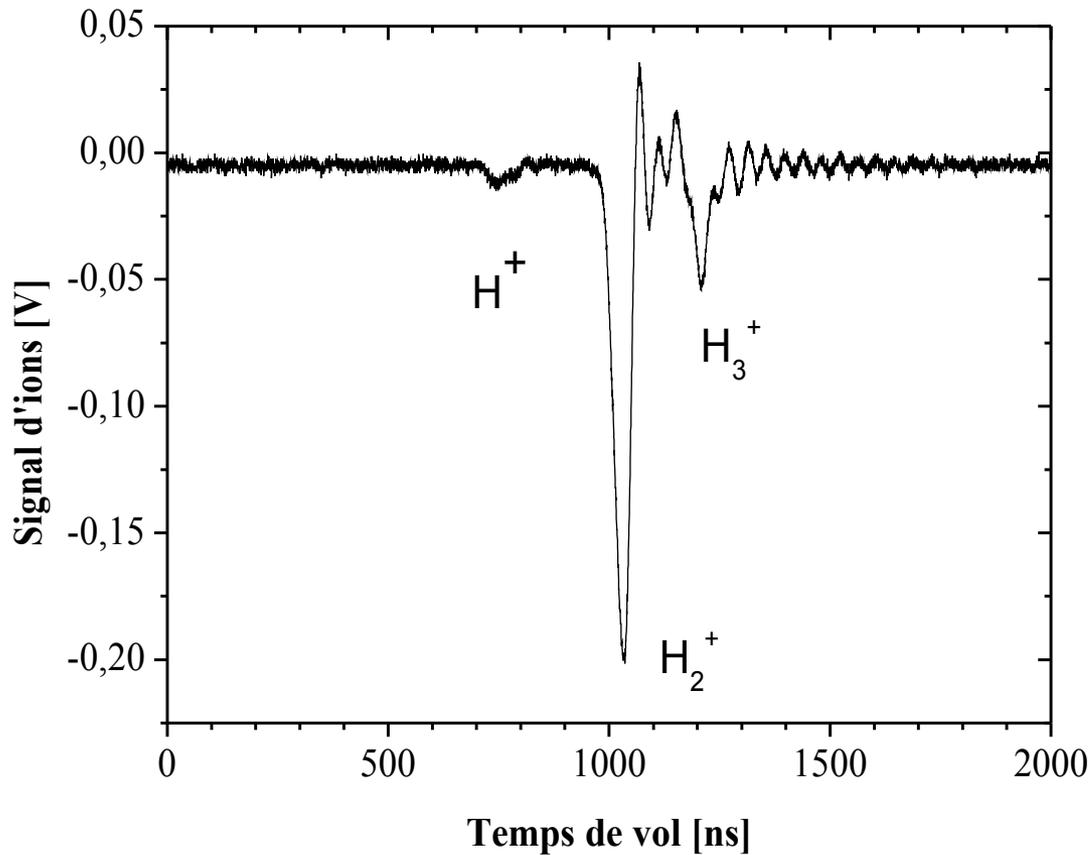
UV

$r_0 = 4,24 \text{ mm}$
 $z_0 = 3 \text{ mm}$

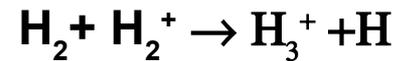
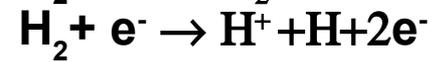
Nombre d'ions maximal attendus
~100 000



Temps de vol



Impact
électronique



Collisions

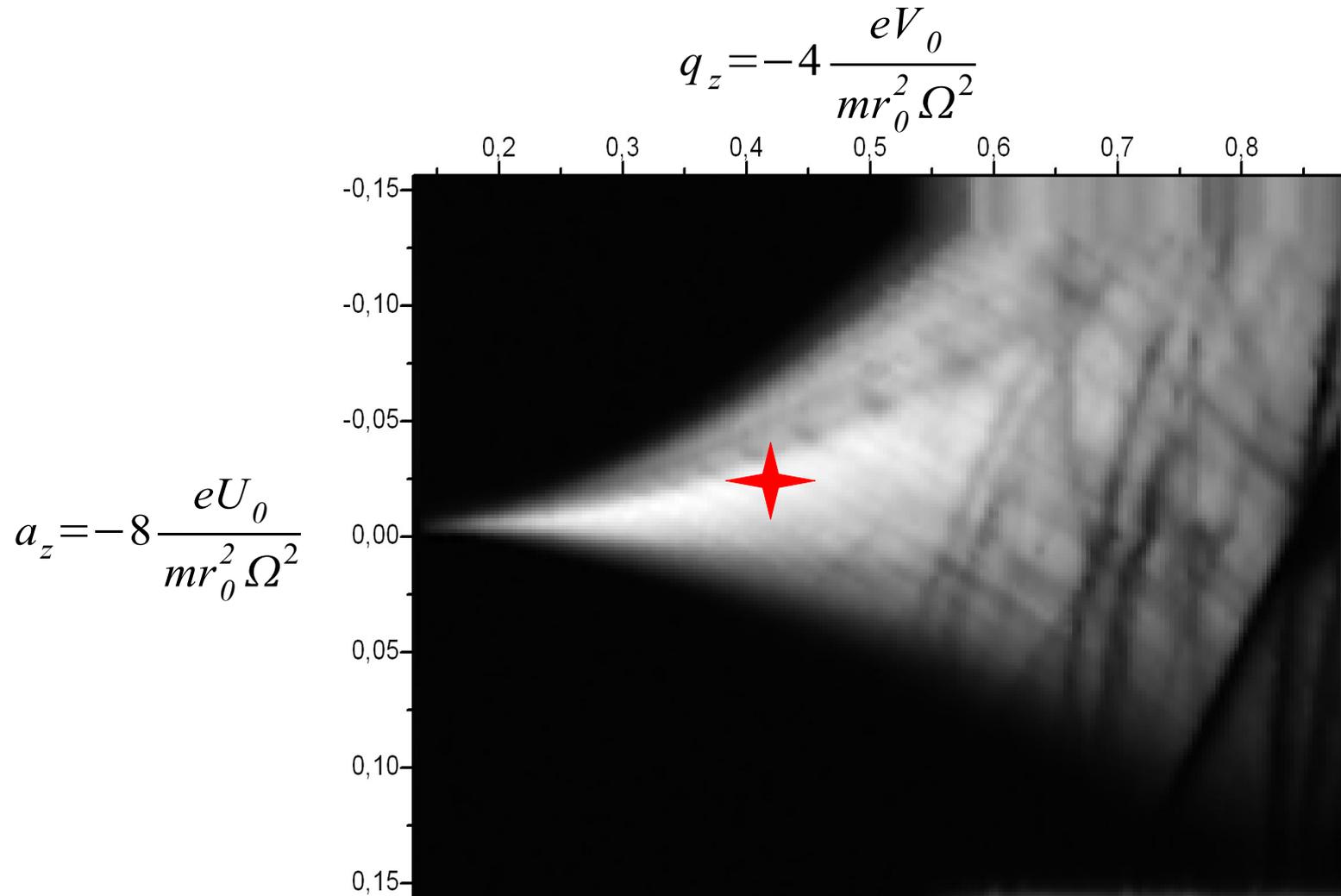
~ 2000 ions

Temps de charge ~ 0.3 s

Temps de vie ~ 2 s

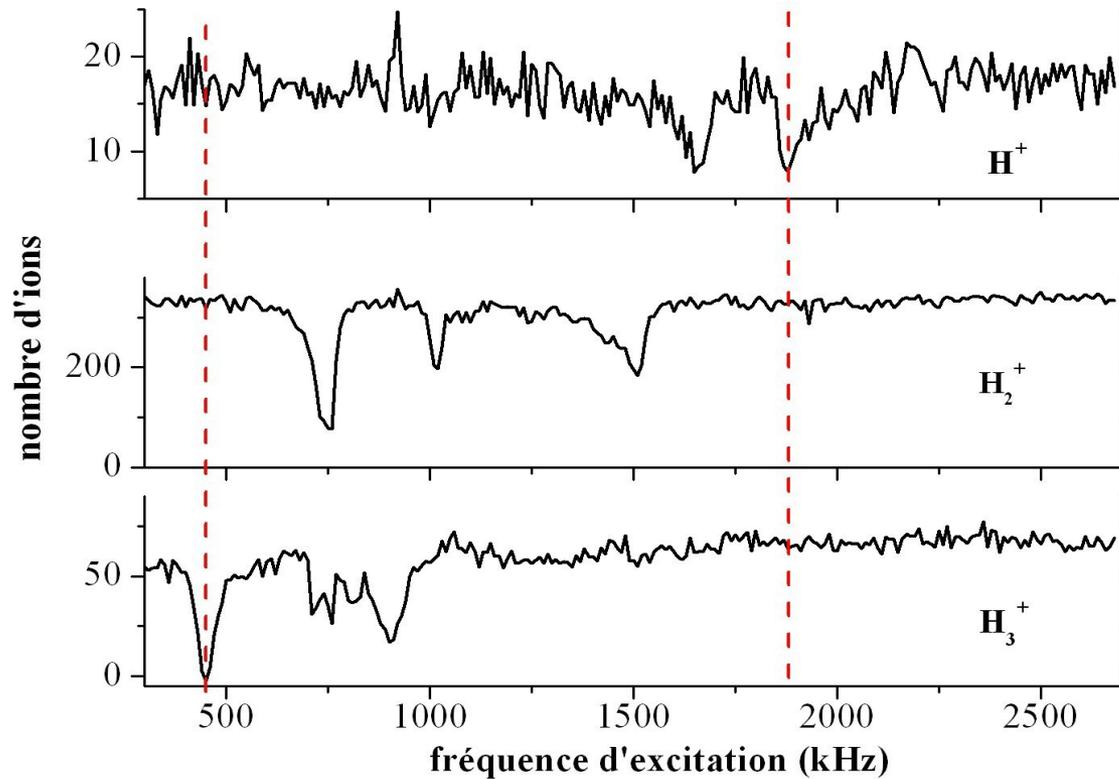


Diagramme de stabilité



Piégeage simultané de H^+ et H_2^+ $U_0 \sim 1$ V, $V_0 \sim 140$ V et $\Omega = 14,24$ MHz .

Excitation paramétrique:

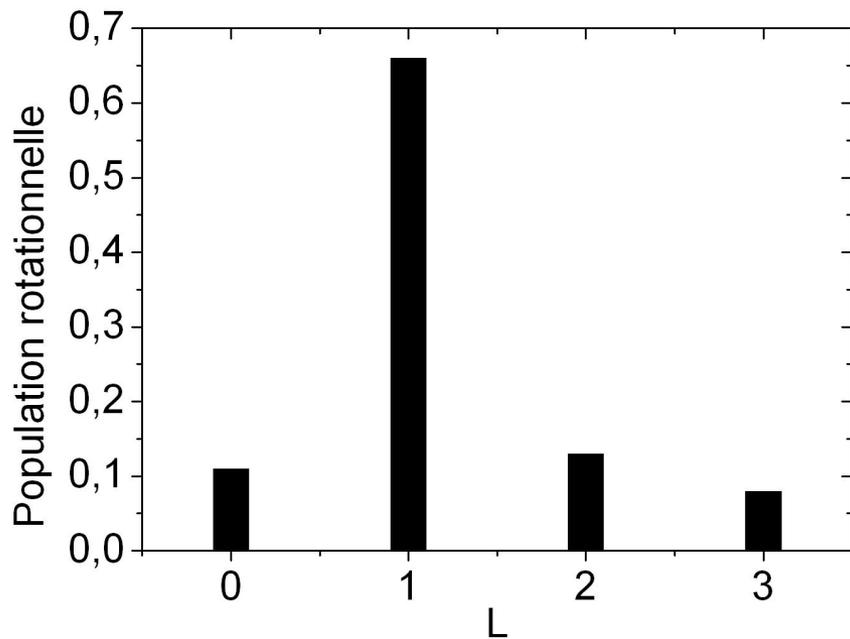


→ Nuage pur de 2000 ions H₂⁺



distribution ro-vibrationnelle de H_2^+

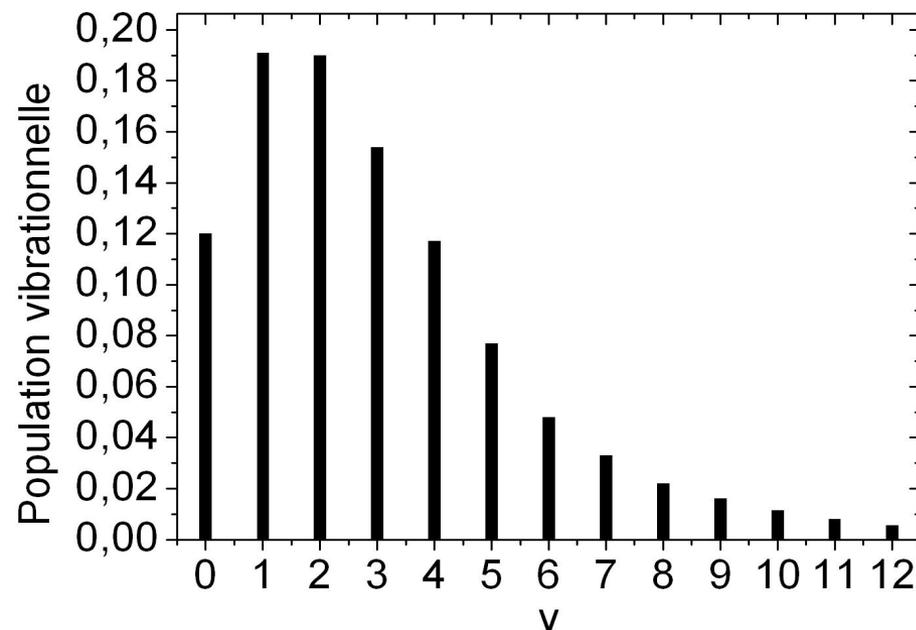
Population rotationnelle à 300 K



13% dans L=2

Population vibrationnelle

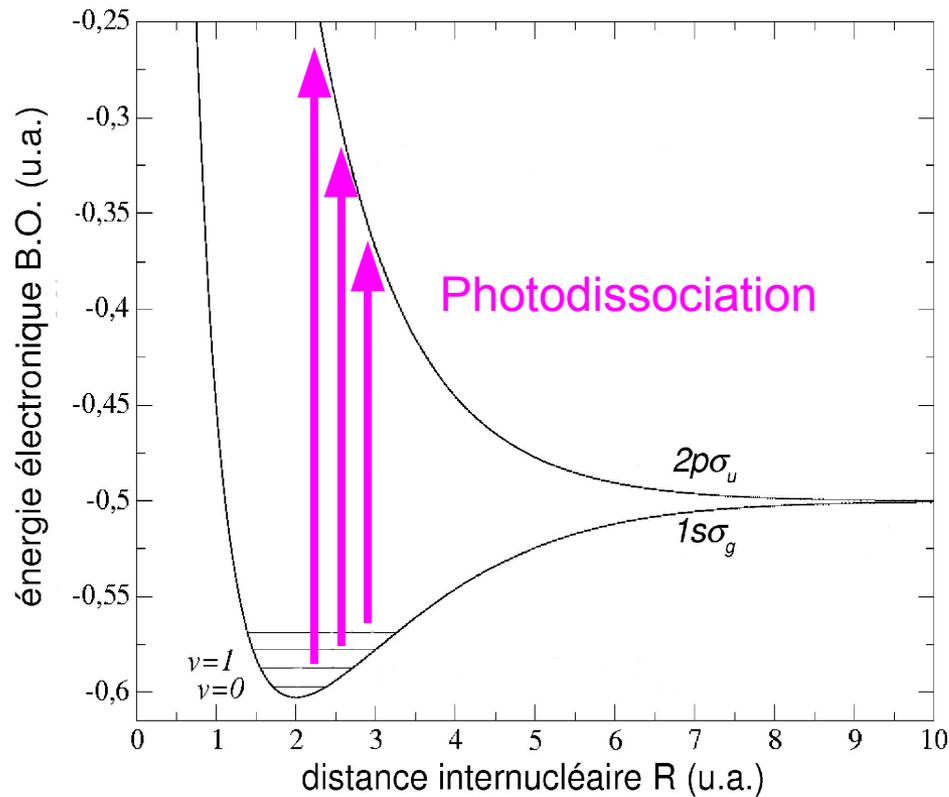
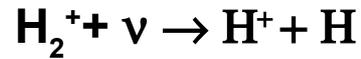
G. Werth, Z. Phys. D 28 (1993).



12% dans v=0

→ 1,6% dans L=2, v=0

→ Structure hyperfine: 0,4 à 0,6%

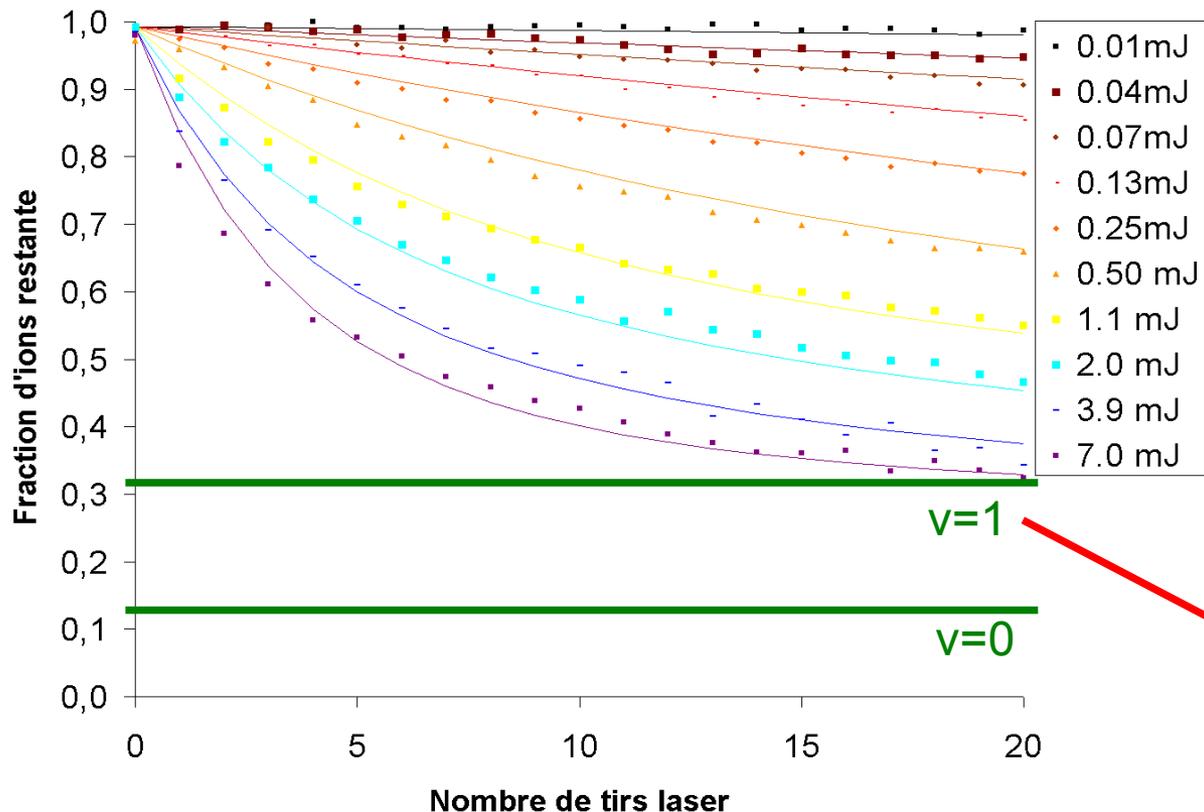


➤ Source : Laser à excimère KrF

- $\lambda=248$ nm
- 220 mJ sur 10 ns
- 1 à 100 Hz
- ~ 2 mm² dans le piège



Photodissociation de différents niveaux vibrationnels



Données :

- Sections efficaces de photodissociation et populations des 13 premiers niveaux vibrationnels
- Energie par impulsion

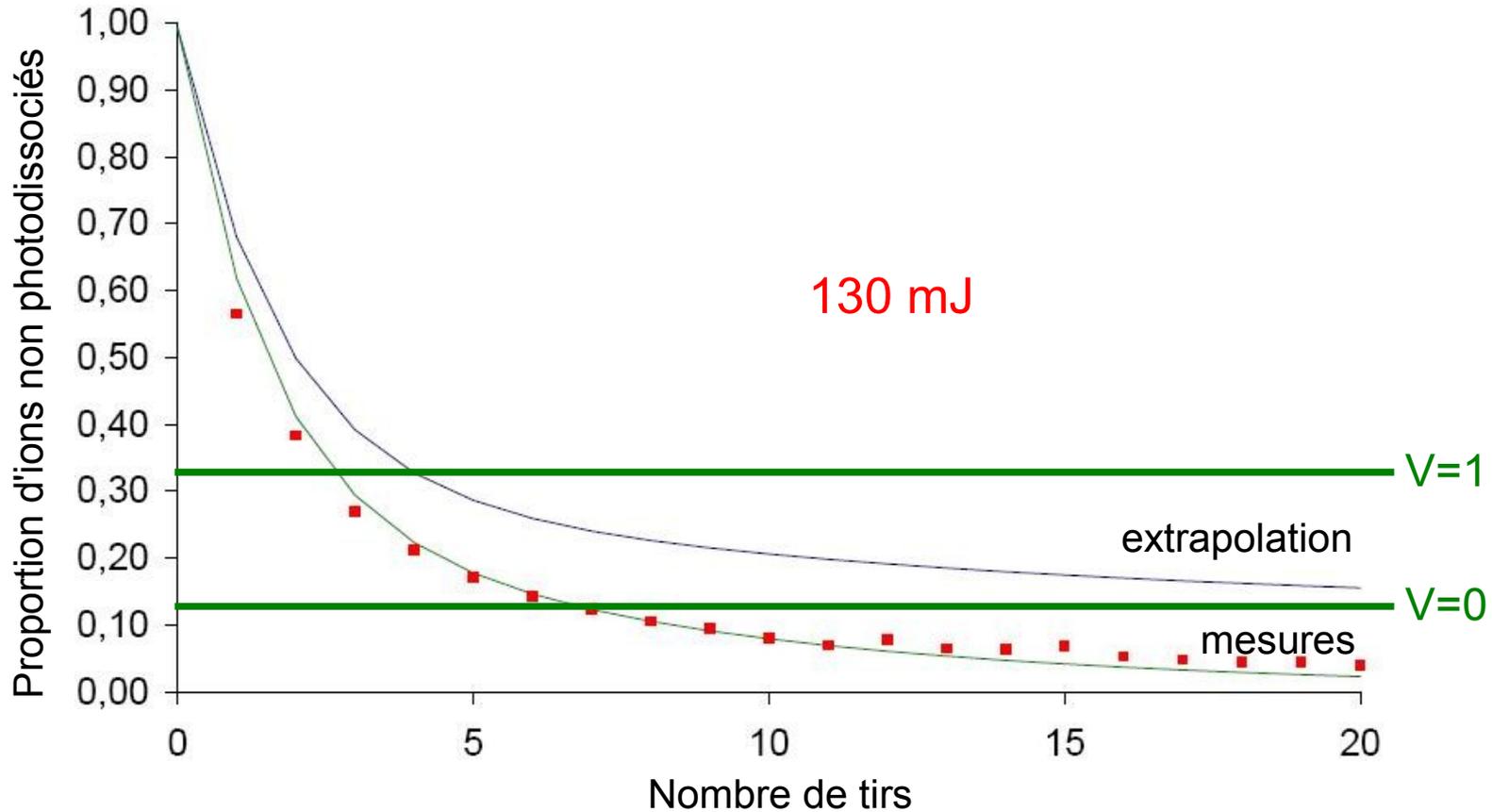
Ajustement:

- section du faisceau: $1,8 \text{ mm}^2$
- proportion d'ions irradiés: 0,34 (nuage d'ions $\sim 5,6 \text{ mm}^2$)

Sélection de $v=0$ et 1



Sélection de $v=0$



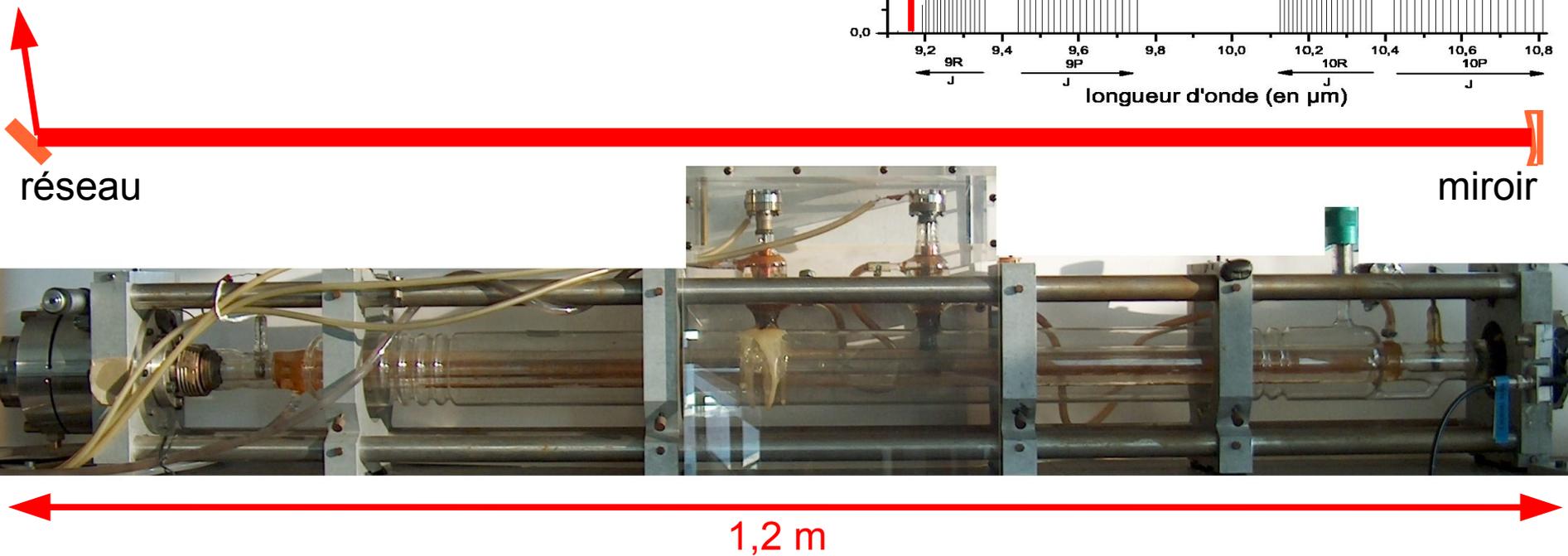
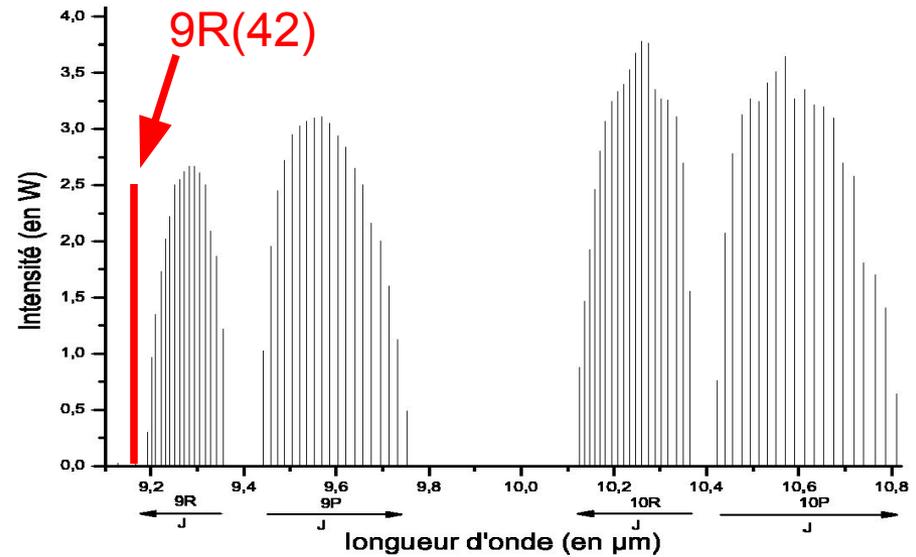
→ Amélioration du vide

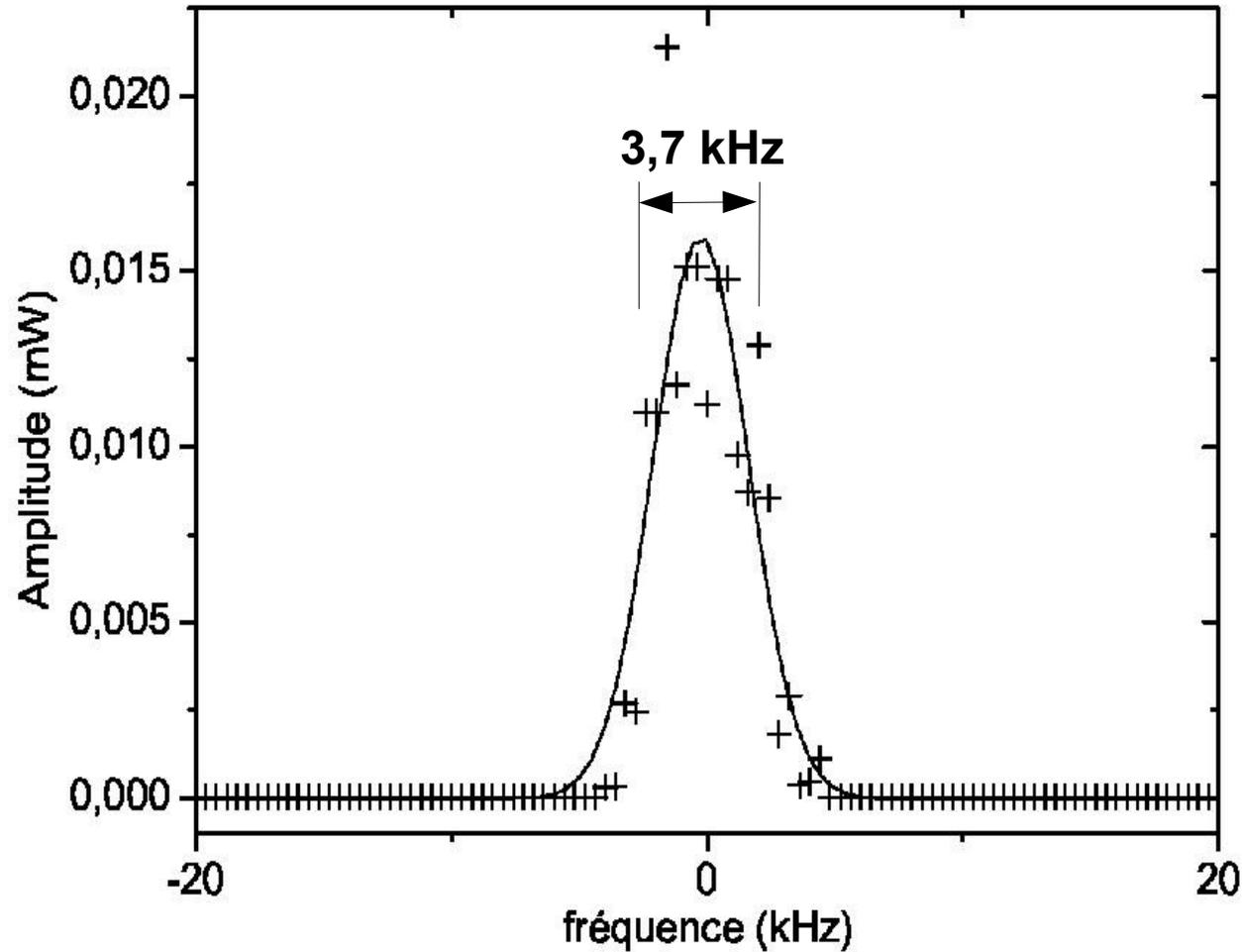


III. Laser d'excitation de la transition à deux photons

- Laser à CO_2
- Référence de fréquence (HCOOH)
- Laser à cascade quantique
- Spectroscopie de l'acide formique
- Cavité de haute finesse

- Spectre de raie dans le domaine 9 -11 μm
- Puissance d'émission ~ 1 W
- Grande stabilité intrinsèque
- Accordabilité 80 MHz (jusqu'à 200 MHz avec des AOM)



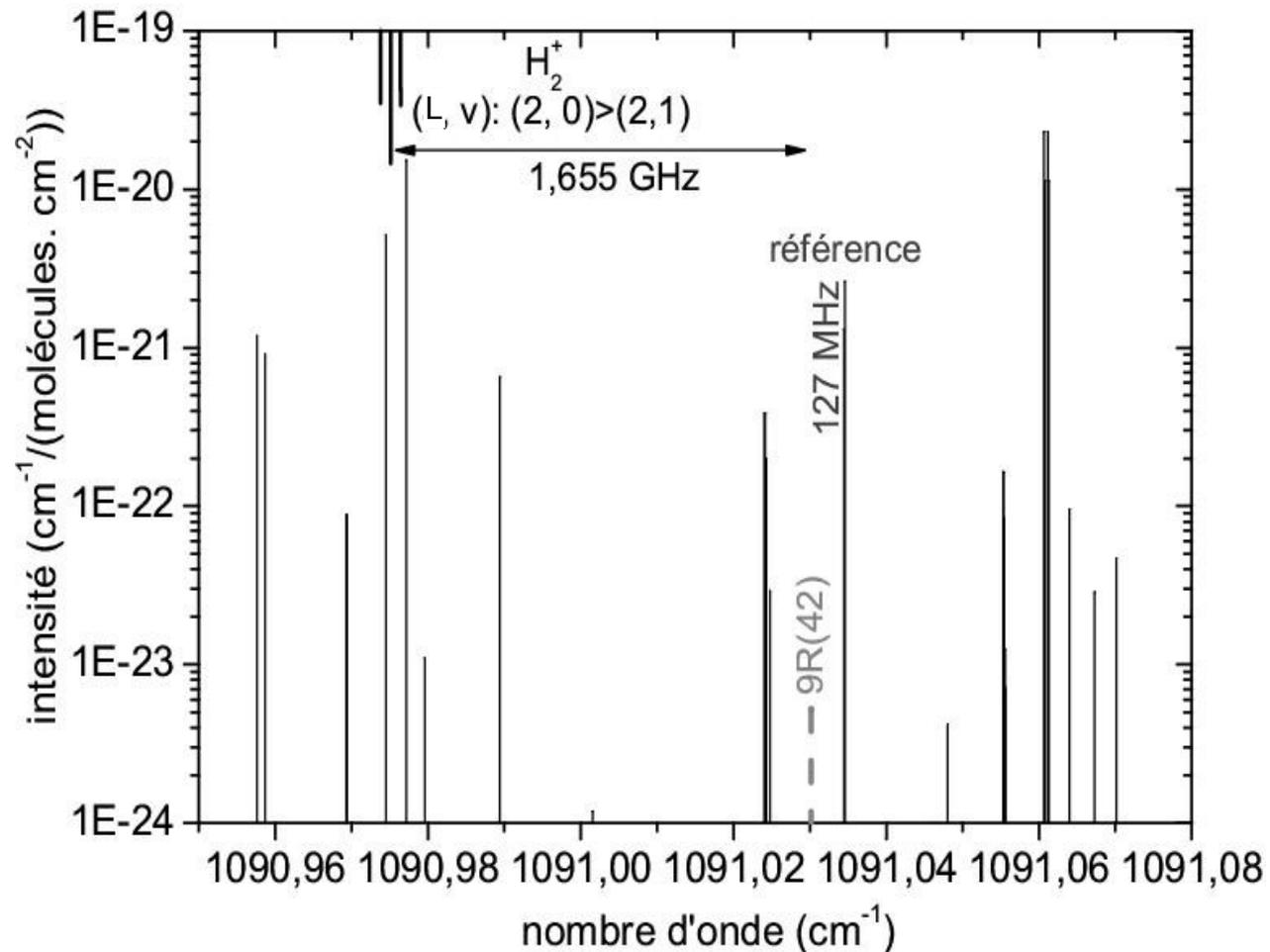


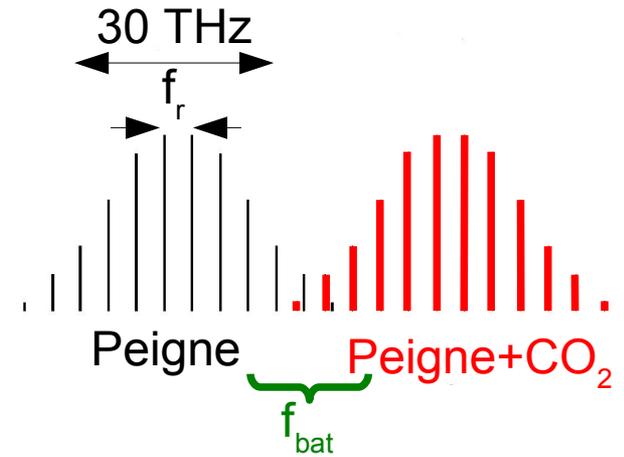
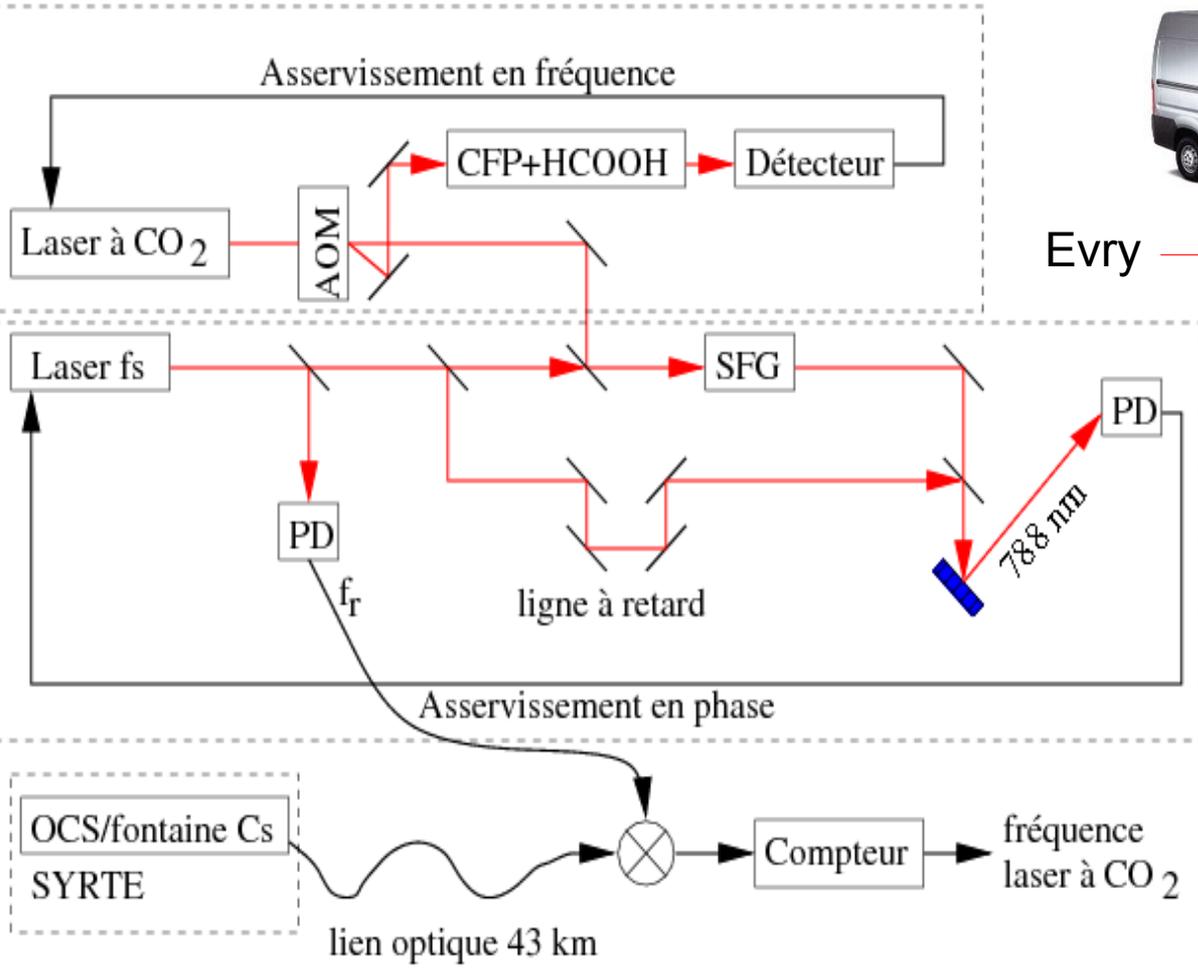
→ Largeur du laser : 2,6 kHz

Base de données HITRAN:

- Raie proche du CO_2
- Raie intense

→ Acide formique
HCOOH





$$f_{CO_2} = (p - q) f_r \pm f_{bat}$$



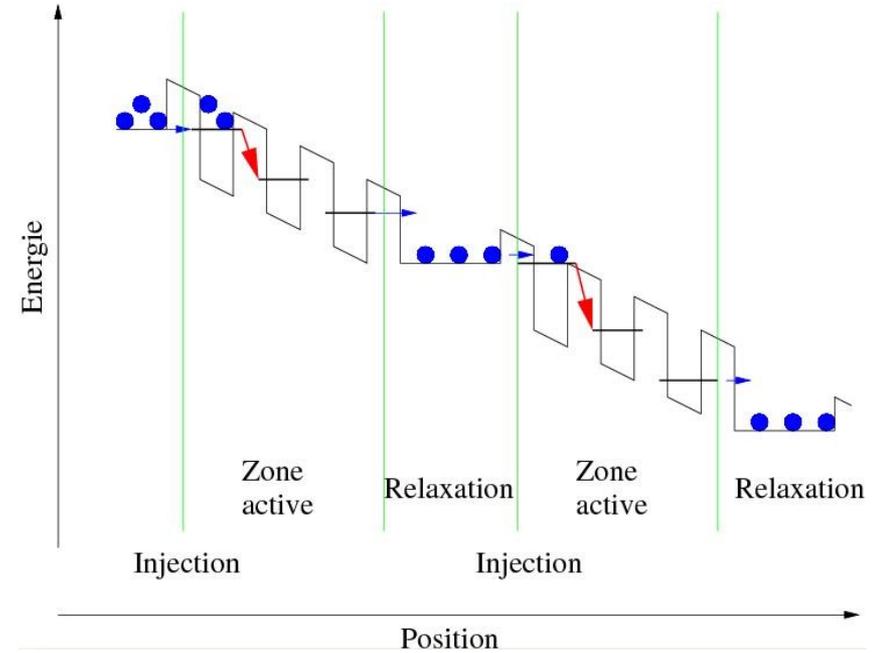
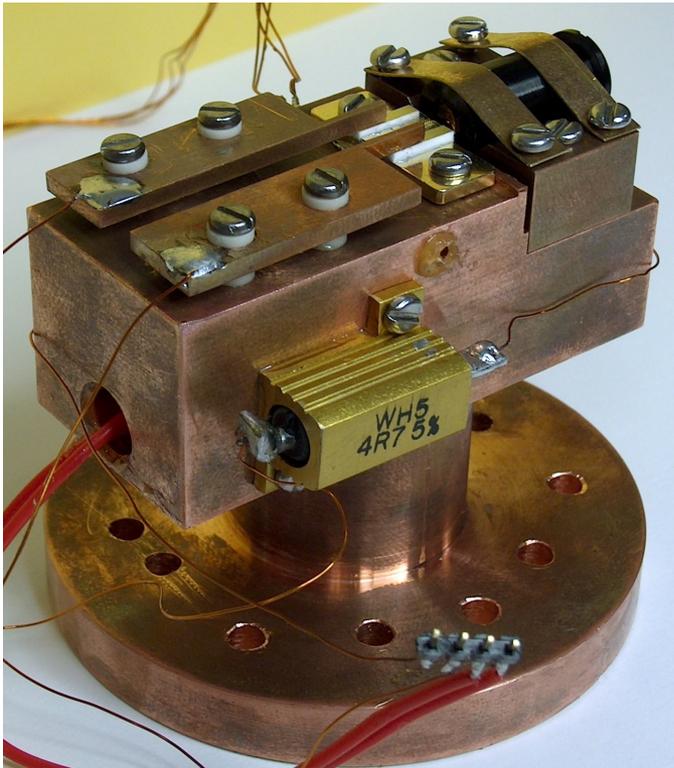
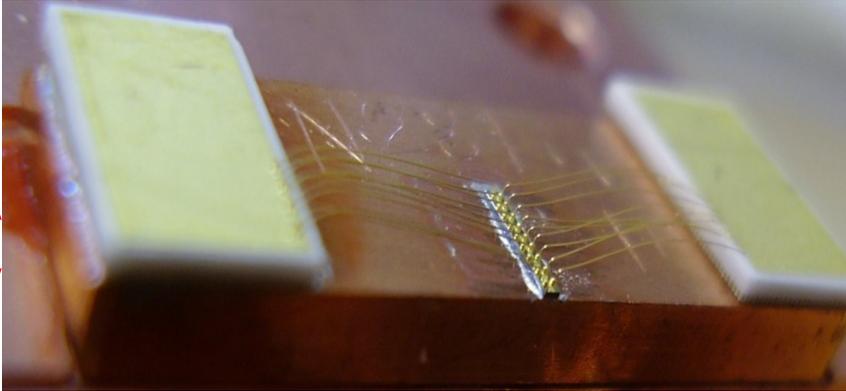
Résultats des mesures



CO ₂	Fréquence HCOOH (kHz)
9R(36)	32 615 874 282,1
9R(38)	32 647 442 530,0 32 647 451 806,2
9R(40)	32 678 207 409,5 32 678 247 320,7
9R(42)	32 708 391 980,5

Incertitude: 1 kHz

2 mm



- 50 mW à 80 K
- Continûment accordable sur 120 GHz
- Jitter sur plus de 20 MHz
- Spectre large : 2 MHz

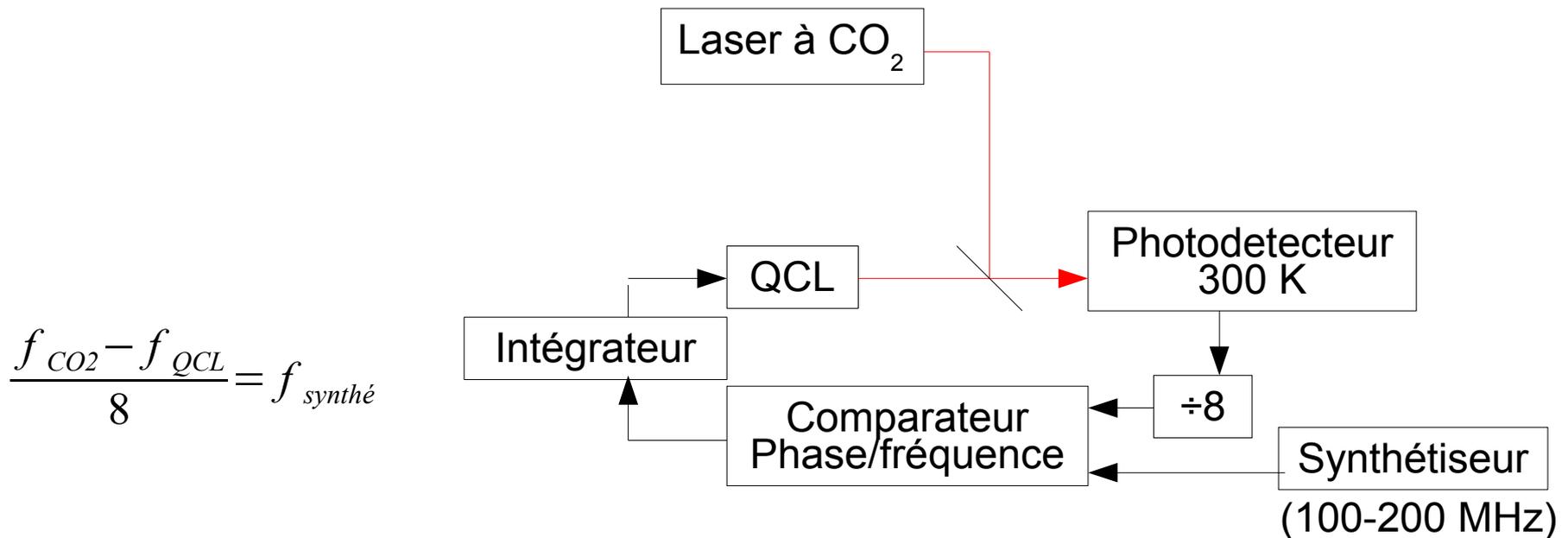
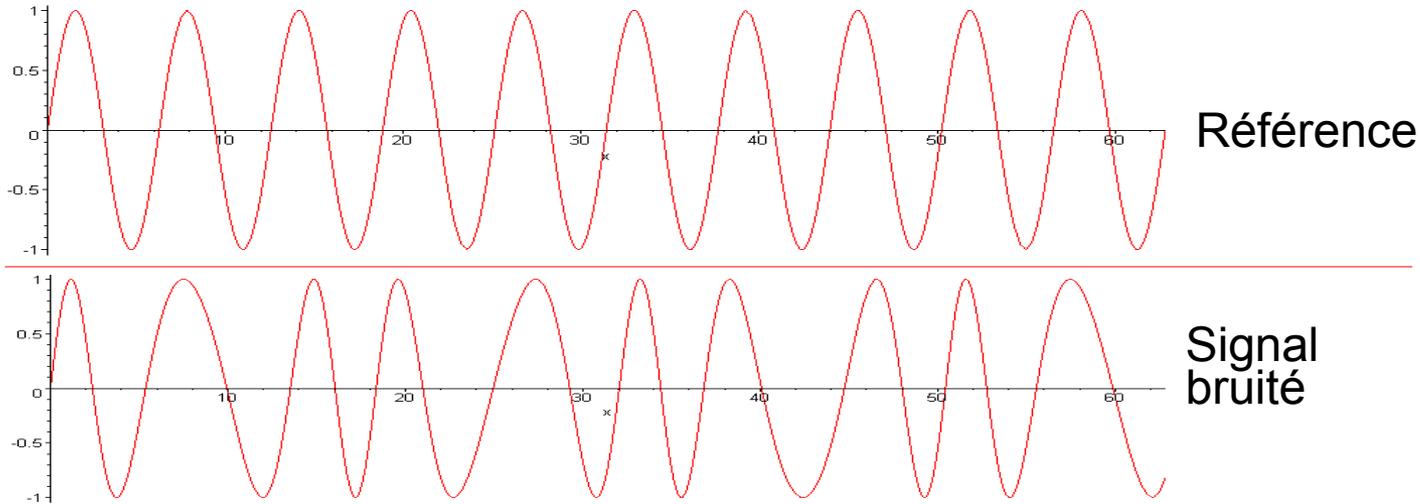


Laser à CO₂/QCL

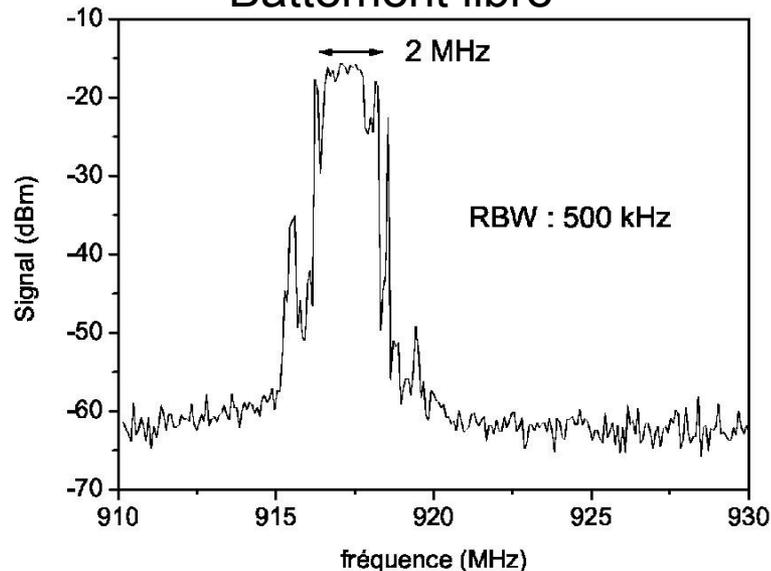
Laser à CO₂	QCL
puissance 1 W	puissance 50 mW
stable	agité
étroit (2,6 kHz)	large (2 MHz)
peu accordable (80 MHz)	continûment accordable (120 GHz)



Asservissement en phase



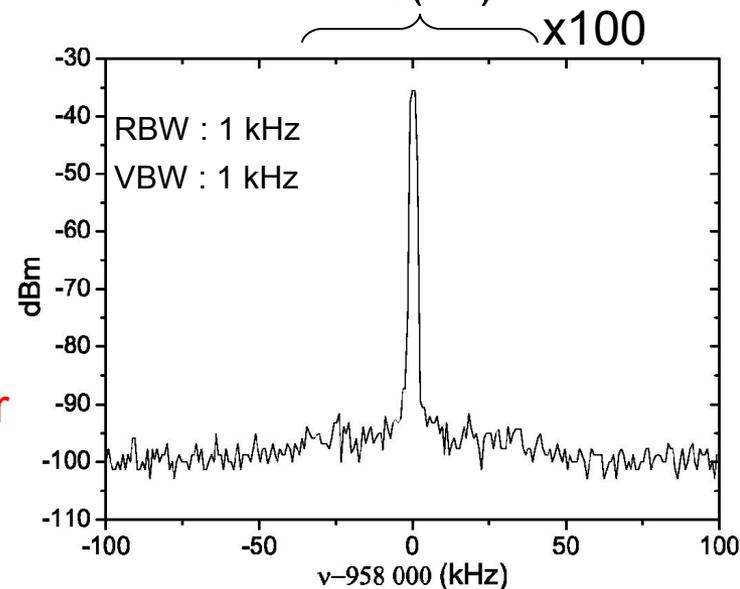
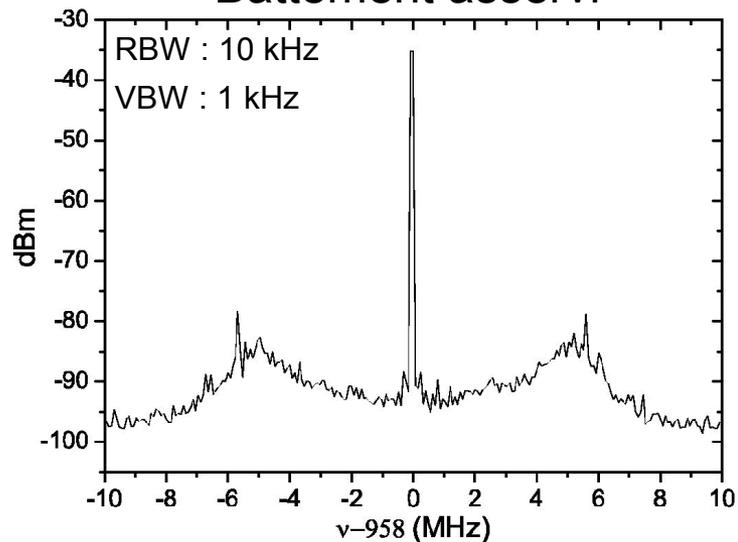
Battement libre



- bande passante ~ 6 MHz
- largeur du pic < 200 Hz
- 99.5% de l'énergie dans le pic central

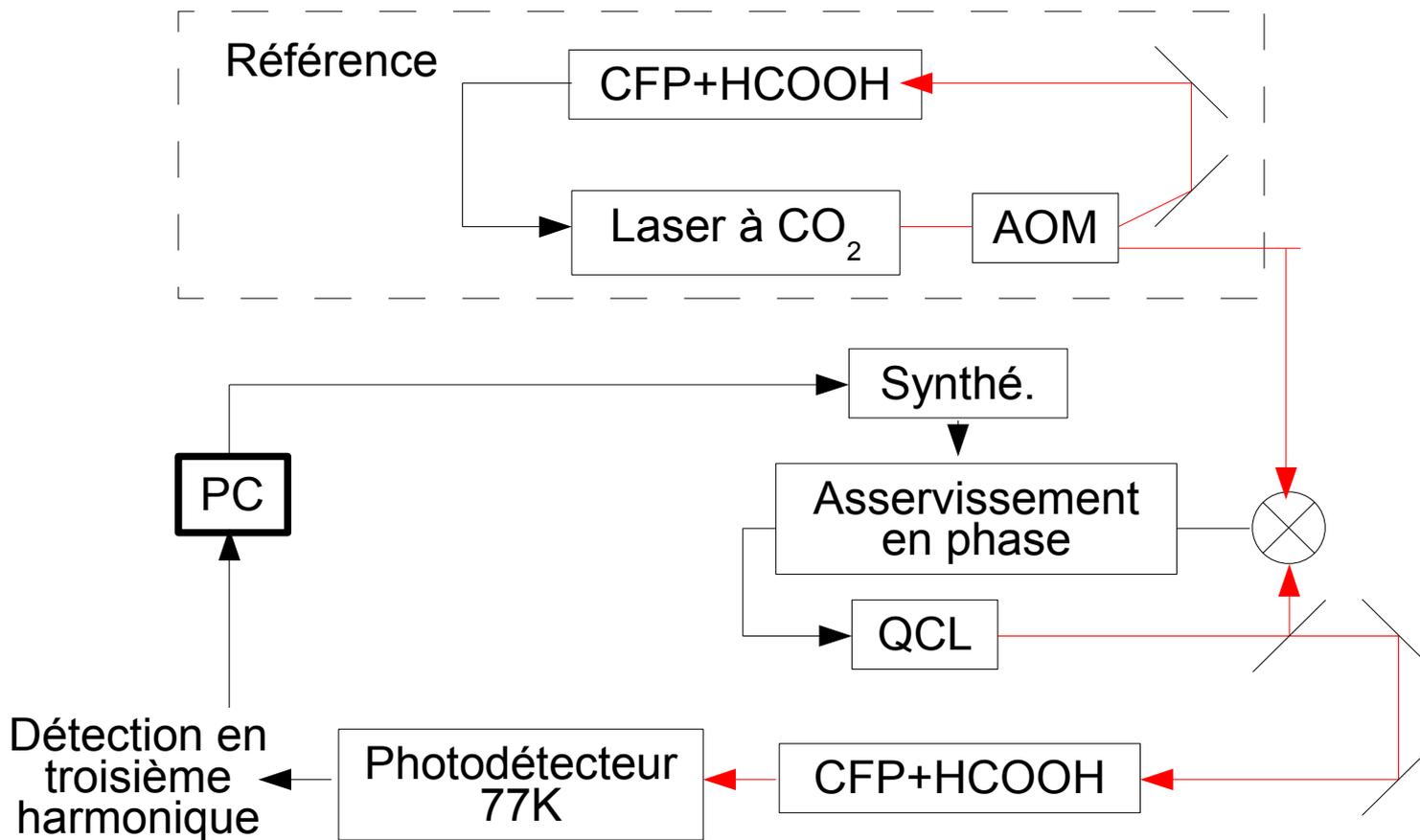
- Largeur et stabilité du laser à CO_2
- Accordabilité: 300 MHz à 1,8 GHz autour de la raie d'émission du laser à CO_2 .

Battement asservi





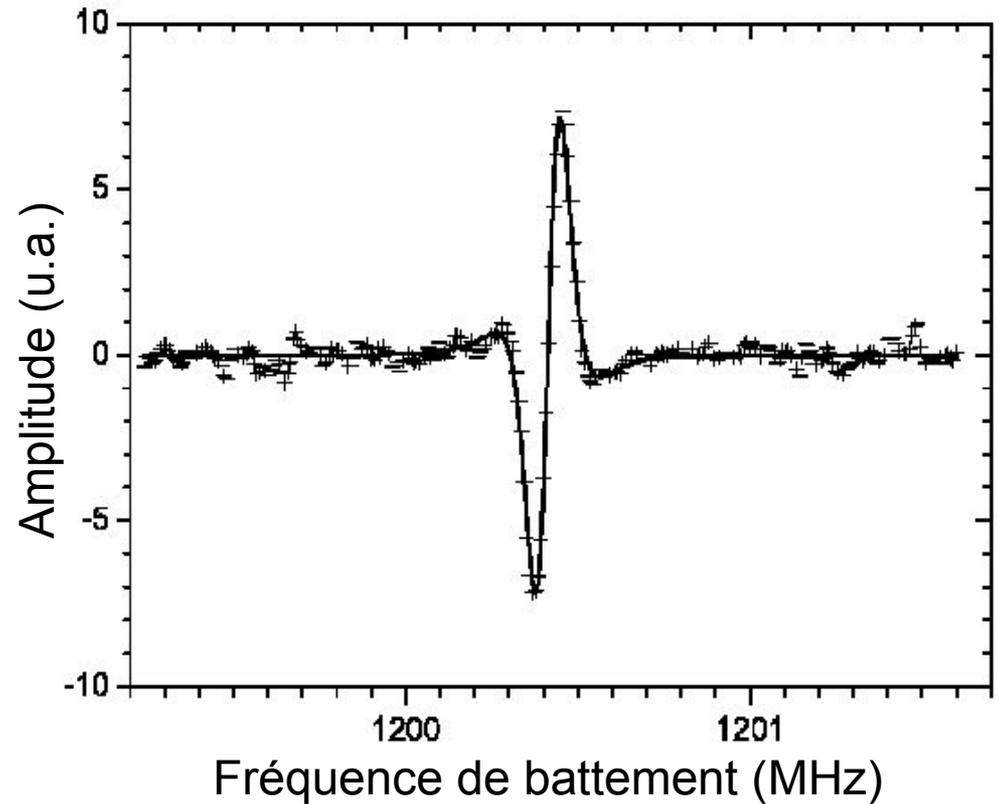
Spectroscopie de l'acide formique





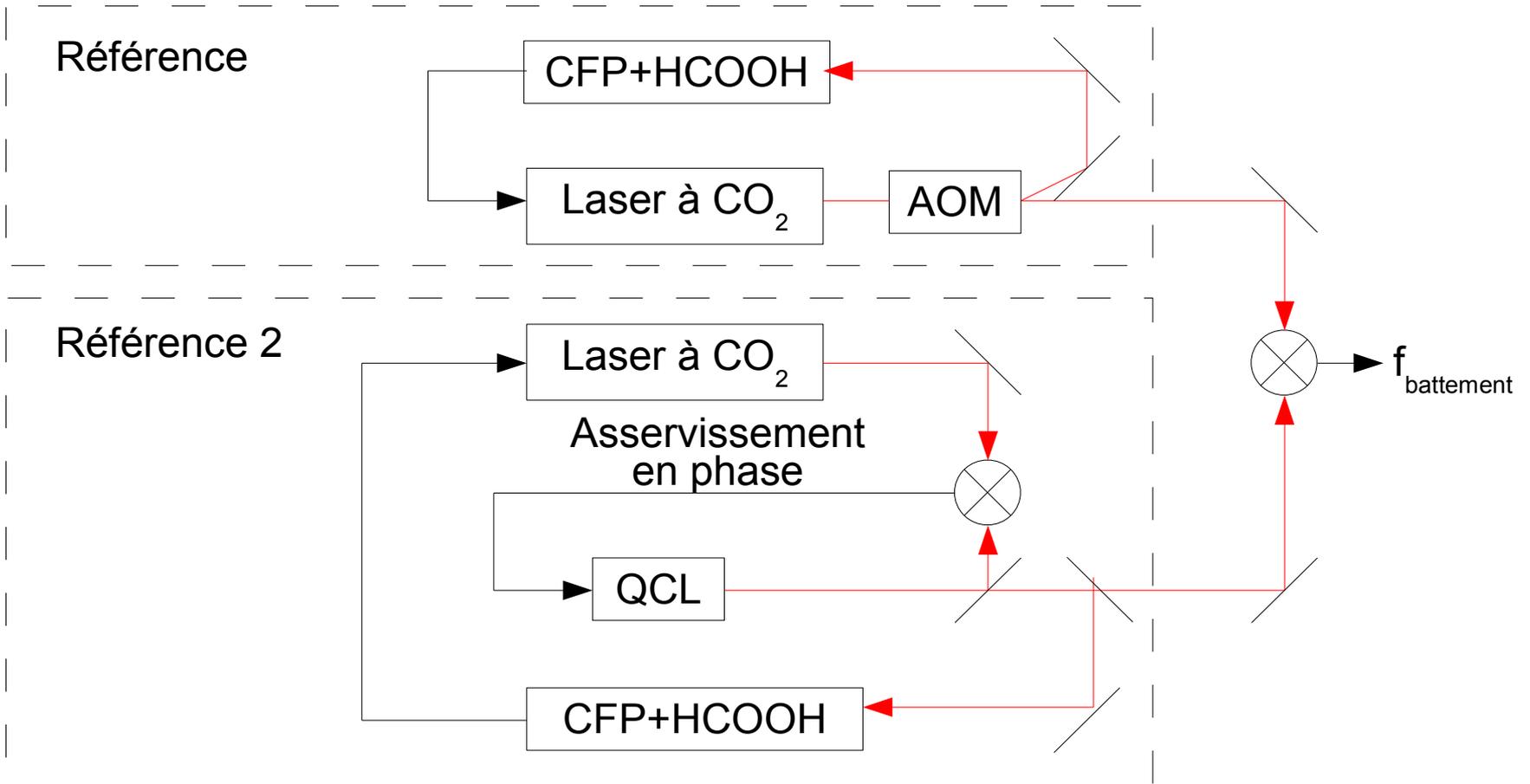
Résultats

- Courbes ajustées par une dérivée troisième de Lorentzienne
- Largeurs de raies: 160 à 220 kHz (modulation du laser à CO_2)
- 17 raies mesurées
- incertitude sur les fréquences: 2kHz



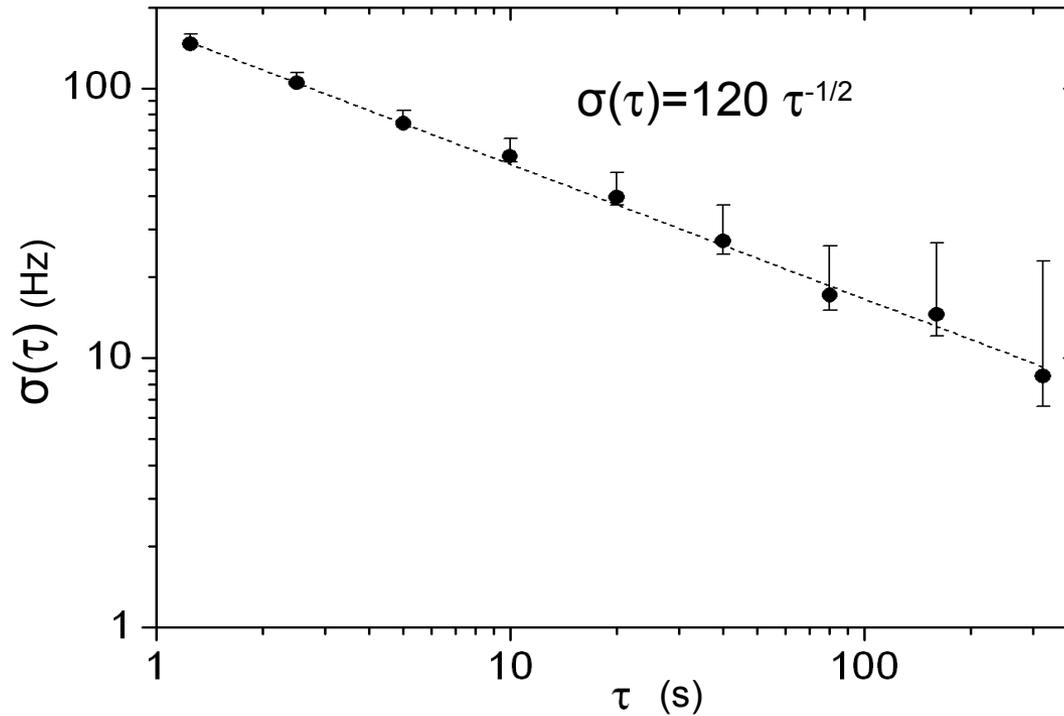


Mesure de stabilité



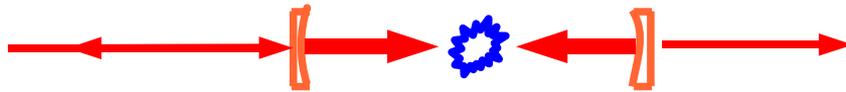


déviatiun d'Allan



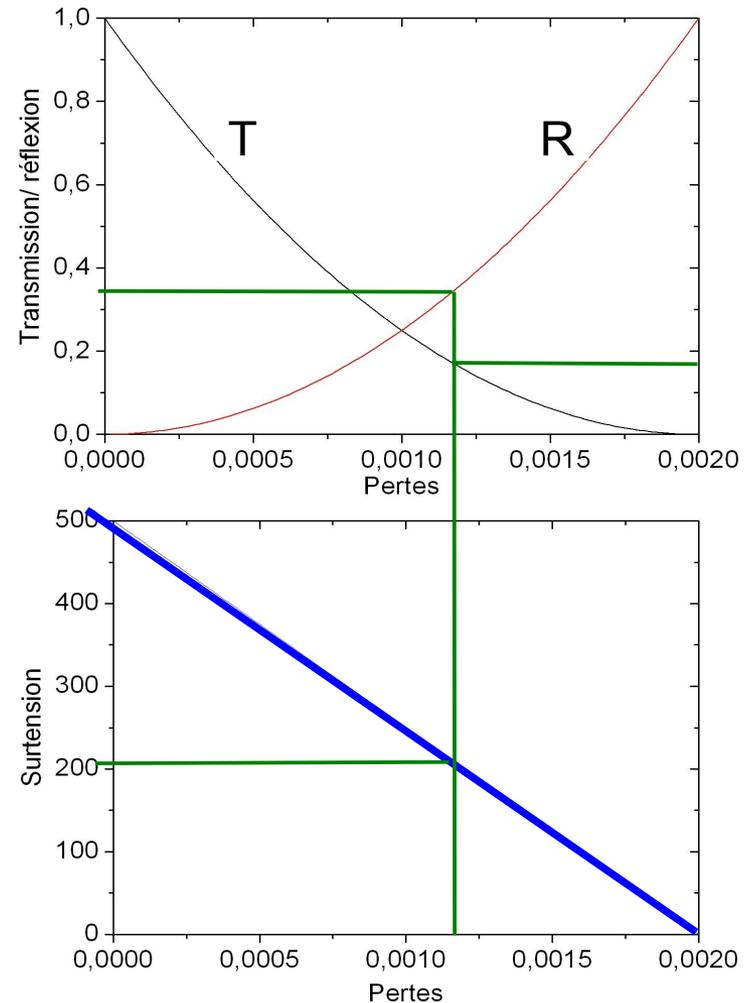
➤ Stabilité:

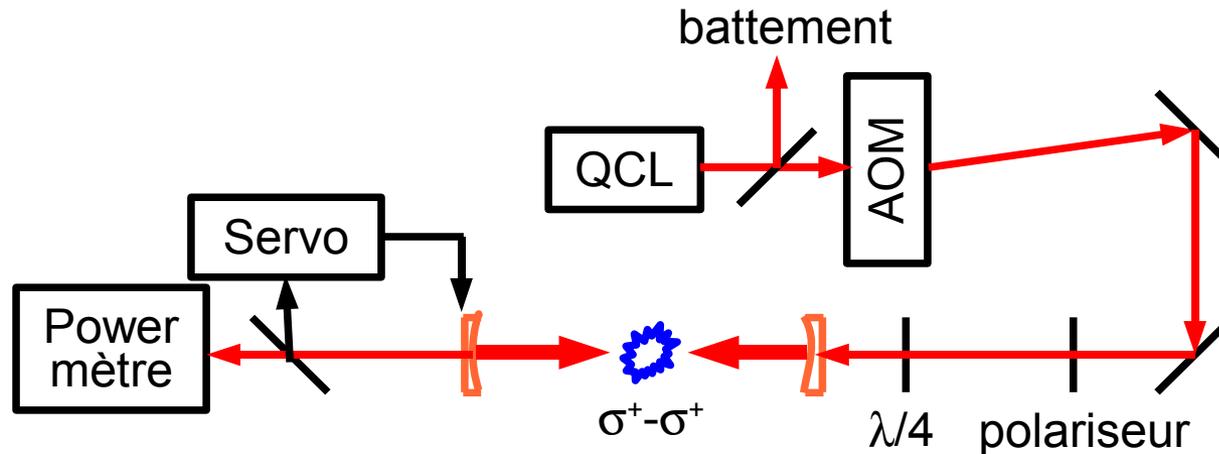
- ~ 120 Hz sur 1 s
- ~ 10 Hz sur 100 s



- Miroirs : $R_{\text{miroir}} = 99,8\%$,
- Finesse mesurée: ~ 1200 à 1500
- Mesure de $T \sim 0,08\%$ et $P \sim 0,12\%$

Surtension : >200





➤ Isolation optique:

- diode optique 40 dB
- AOM 6dB

- Puissance transmise 6,5 mW
- Puissance QCL incidente : 30 mW
- Puissance intra-cavité ~ 6 W, soit environ 2 W/mm²

⇒ Taux de transition H₂⁺: ~ 0,7 s⁻¹



Conclusion



- **Théorie : structure et position des raies**
- **Ions piégés**
- **Photodissociation**
- **Source laser d'excitation de la transition à deux photons**
 - **Référence**
 - **Source QCL opérationnelle**
 - **Spectroscopie HCOOH**
 - **Cavité de surtension**



Perspectives



Court terme:

amélioration du vide

Moyen terme:

- piège à ions linéaire
- raie fondamentale de H_2^+ ($L=0$)

Long terme:

- refroidissement des ions



Equipe/collaborations



Evry

membres permanents

Nicolas Billy

Albane Douillet

Laurent Hilico

Jean-Philippe Karr

post-doc

Jofre Pedregosa

anciens membres

Stéphane Ustaze

Rémy Battesti

Senem Kilic

Tristan Valenzuela

Collaborations

JINR, Dubna:

V. Korobov

LNE-SYRTE:

·Ouali Acef

·Giorgio Santarelli

·Michel Lours

LPL:

·Khelifa Djerroud

·Andrei Goncharov

·Christophe Daussy

·Anne Amy-Klein