



**HAL**  
open science

# Sources optiques cohérentes pour la spectroscopie. Développements de la microscopie de photodétachement.

Cyril Drag

► **To cite this version:**

Cyril Drag. Sources optiques cohérentes pour la spectroscopie. Développements de la microscopie de photodétachement.. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2010. tel-00560331

**HAL Id: tel-00560331**

**<https://theses.hal.science/tel-00560331>**

Submitted on 28 Jan 2011

**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.

## Mémoire

présenté pour obtenir l'

HABILITATION A DIRIGER DES  
RECHERCHES DE L'UNIVERSITÉ  
PARIS-SUD XI

Spécialité: Physique

par

Cyril DRAG

**Sources optiques cohérentes pour la  
spectroscopie. Développements de la  
microscopie de photodétachement.**

Soutenue le 15 décembre 2010 devant la Commission d'examen:

M.	Christian BORDAS	(Rapporteur)
M.	Christian DELSART	
Mme	Danielle DOWEK	(Présidente du jury)
M.	François HACHE	(Rapporteur)
Mme	Lucile JULIEN	(Rapporteur)
M.	Michel LEFEBVRE	



Habilitation préparée au  
**Laboratoire Aimé Cotton** UPR3321  
Bât. 505, campus d'Orsay  
Université Paris-Sud 11  
91 405 Orsay CEDEX

A Ivan Lorgeré,



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>8</b>
<b>I Sources cohérentes pour la spectroscopie</b>	<b>15</b>
<b>1 Oscillateurs paramétriques opt. à grande longueur de cohérence pour le visible</b>	<b>17</b>
1.1 Motivation . . . . .	17
1.2 OPO : principe et éléments historiques . . . . .	18
1.3 OPO « rouge » . . . . .	28
1.4 SROPO avec doublage de fréquence intracavité . . . . .	34
1.5 Stabilisation en fréquence et mesure du bruit résiduel . . . . .	37
1.6 Effets Raman . . . . .	40
1.7 Quelques effets indésirables dans les SROPO continus . . . . .	41
<b>2 Verrouillage en phase des modes d'un oscillateur paramétrique optique</b>	<b>44</b>
2.1 Problématique . . . . .	44
2.2 Eléments théoriques . . . . .	45
2.3 DROPO dans le régime quasi-continu . . . . .	47
2.4 SROPO dans le régime continu . . . . .	49
2.5 Modélisation numérique de l'effet de saturation . . . . .	50
2.6 Conclusion et perspectives . . . . .	52
<b>3 Sources impulsionnelles monomodes</b>	<b>52</b>
3.1 Problématique . . . . .	52
3.2 OPO à cavités duales . . . . .	53
3.3 Chaîne impulsionnelle du LAC . . . . .	60
<b>Références</b>	<b>68</b>

<b>II</b>	<b>Microscopie de photodétachement de 2<sup>nde</sup> génération</b>	<b>80</b>
<b>4</b>	<b>Ions négatifs et photodétachement</b>	<b>84</b>
4.1	Les ions négatifs . . . . .	84
4.2	Photodétachement . . . . .	88
4.3	Photodétachement en champ électrique . . . . .	94
<b>5</b>	<b>La microscopie de photodétachement</b>	<b>96</b>
5.1	Problématique : un interféromètre à deux ondes obtenu par chute libre . . . . .	97
5.2	Courant électronique créé par une source ponctuelle libre . . . . .	97
5.3	L'approche semi-classique . . . . .	101
<b>6</b>	<b>L'expérience</b>	<b>104</b>
6.1	Le jet d'ions négatifs . . . . .	105
6.2	Les lasers . . . . .	108
6.3	L'observation des interférogrammes . . . . .	109
<b>7</b>	<b>Spectroscopie des ions négatifs</b>	<b>113</b>
7.1	Une spectroscopie électronique précise à quelques mk près . . . . .	114
7.2	Microscopie de photodétachement à deux couleurs . . . . .	117
7.3	Structure fine - Décalage isotopique d'affinités électroniques . . . . .	119
7.4	Microscopie de photodétachement moléculaire . . . . .	122
<b>8</b>	<b>Microscopie de photodétachement en champ magnétique</b>	<b>124</b>
8.1	Photodétachement en champ magnétique (et éventuellement en champ électrique) . . . . .	124
8.2	Expériences en champ magnétique transverse tel que $\Delta T < T < T_k$ , typiquement $ \vec{B}  \approx 1 \mu \text{ T}$ . . . . .	126
8.3	Expériences en champ magnétique longitudinal tel que $\Delta T < T_k \approx T$ , typiquement $ \vec{B}  \approx 100 \mu \text{ T}$ . . . . .	128
<b>9</b>	<b>Photodétachement en régime impulsif</b>	<b>130</b>
9.1	Montage expérimental . . . . .	130

9.2	Affinité électronique de l'iode . . . . .	131
9.3	Effet pondéromoteur . . . . .	131
<b>10</b>	<b>Perspectives : Microscopie de photodétachement vers de nouveaux états</b>	<b>133</b>
10.1	La microscopie de photodétachement produisant un électron de moment cinétique orbital non nul . . . . .	134
10.2	Photodétachement en laissant l'atome dans un état excité : perspectives sur les alcalins et exemple de P . . . . .	135
	<b>Références</b>	<b>137</b>
<b>III</b>	<b>Publications</b>	<b>148</b>
	Liste de publications (première page)	150

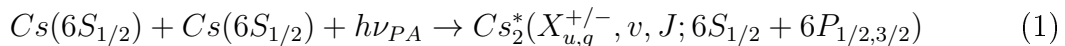


# Introduction

## Le travail doctoral

Après l'obtention du DEA « Laser et matière », j'ai effectué ma thèse de 3ème cycle à partir d'octobre 1997 au laboratoire Aimé-Cotton (LAC) sous la direction de Pierre Pillet. Mon travail expérimental a débuté après la découverte dans ce laboratoire de la possibilité de formation de molécules froides par photo-association d'atomes refroidis et piégés par laser<sup>1</sup>. Le titre du manuscrit était « La photoassociation d'atomes de césium froids. La formation et la caractérisation d'un nuage froid de molécules diatomiques de césium ». Ayant changé de thème de recherche après cette période, je me contente de rappeler ici les grandes lignes des travaux réalisés.

Les expériences de photoassociation moléculaire et de formation de molécules froides sont réalisées à l'aide d'un piège magnéto-optique en cellule de vapeur de césium. Le nuage de forme sphérique avec un diamètre d'approximativement 600 micromètres compte environ 50 millions d'atomes. Le milieu est dilué, les densités atteintes sont de l'ordre de  $5 \times 10^{10}$  atomes/cm<sup>3</sup> et la température des atomes est variée de 20 à 200  $\mu$ K. Au cours du processus de photoassociation moléculaire, une paire d'atomes froids dans leur état fondamental absorbe un photon pendant leur collision, formant une molécule électroniquement excitée dans un niveau de rotation-vibration ( $v, J$ ). La fréquence du laser de photoassociation est légèrement décalée vers le rouge de la fréquence de la transition atomique entre les niveaux  $6S_{1/2} + 6P_{1/2}$  ou  $6S_{1/2} + 6P_{3/2}$ . La réaction s'écrit de la manière suivante :



où  $X_{u,g}^{+/-}$  désigne l'état moléculaire électronique exprimé dans la base du cas c) de Hund. La très faible énergie cinétique de collision (2 MHz) permet la réalisation d'expériences de spectroscopie moléculaire à haute résolution. Les photons sont principalement absorbés à grande distance inter-nucléaire, peuplant des niveaux très proches de la limite de dissociation des états moléculaires attractifs électroniquement excités. Pour les systèmes homonucléaires, la variation asymptotique des potentiels excités est en  $1/R^3$ . Le mouvement de vibration de la molécule ainsi formée présente une très longue élongation, allant jusque 200  $a_0$ .

Ainsi, j'ai pris part à des expériences de spectroscopie où nous avons mis en évidence des molécules d'un type particulier (états corrélés à la limite  $6S_{1/2} + 6P_{3/2}$  notés  $0_g^-$  et  $1_u$  dans le cas c de Hund), les molécules dites « purement longue distance ». Ce sont des états moléculaires possédant un minimum local de potentiel à une distance telle que les nuages électroniques des deux atomes ne se recouvrent pas, il n'y a pas de liaison de

---

1. « Formation of cold Cs<sub>2</sub> molecules through photoassociation », Fioretti, A. and Comparat, D. and Crubellier, A. and Dulieu, O. and Masnou-Seeuws, F. and Pillet, P., *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4402 (1998)

valence. Les deux atomes ne sont soumis qu'aux interactions multipolaires. Cette paire d'atomes forme une molécule géante ayant une distance d'équilibre d'environ  $30 a_0$  et peut se décrire en ayant recours à un formalisme de physique atomique.

Ces états purement asymptotiques particuliers permettent de former efficacement des molécules froides dans l'état fondamental (singulet ou triplet). En effet, l'émission spontanée, suite à l'excitation d'un état moléculaire par photoassociation, conduit le plus souvent à la dissociation des molécules, mais l'excitation d'un état « purement longue distance » conduit à l'émission spontanée vers un état stable lié du fondamental due à la présence d'un point de Condon à distance intermédiaire (double-puits). La possibilité d'obtenir ainsi un échantillon de molécules froides est particulièrement intéressante car les techniques de refroidissement et de piégeage par laser ne peuvent s'étendre aux molécules à cause de l'absence d'un schéma fermé de pompage optique permettant le recyclage de la population moléculaire<sup>2</sup>. Les molécules froides sont détectées par temps de vol après leur photoionisation moléculaire par un laser impulsif, donnant lieu à une transition sélective à deux photons. Les molécules stables détectées efficacement peuplent le niveau électronique  $a^3\Sigma_u^+$  et des niveaux vibrationnels de grand nombre quantique  $v$ , d'énergie proche de la limite  $6s + 6s$ . Les molécules stables ainsi formées ne sont pas concernées par le processus de piégeage, elles chutent sous l'effet de la gravité. L'expansion balistique du nuage moléculaire en chute libre, due à la distribution initiale des vitesses des molécules, a été analysée et nous avons déterminé des températures allant de 20 à 200  $\mu\text{K}$ . Nous avons également mesuré précisément le taux de formation de ces molécules en utilisant différentes méthodes expérimentales, cohérentes entre elles. Ce taux dépasse un million de molécules froides formées par seconde dans nos conditions expérimentales. Ce taux important résulte d'une grande efficacité du processus de photoassociation, compris entre 0,5 et  $5 \text{ s}^{-1}$  par atome.

J'ai aussi participé à la découverte de deux nouveaux mécanismes de formation de molécules froides en excitant par photoassociation des états corrélés à la limite asymptotique  $6S_{1/2} + 6P_{1/2}$ . La photoassociation de l'état  $0_g^-$  corrélé à la limite  $6S_{1/2} + 6P_{1/2}$  conduit à la production de molécules froides en raison de la forme particulière du potentiel électronique, attractif et variant en  $1/R^6$ . Il y a simultanément, pour chaque niveau vibrationnel, une efficacité relativement importante pour que la réaction de photoassociation se produise et que l'émission spontanée vers le fondamental ne soit pas négligeable. De manière inattendue, la photoassociation de l'état  $0_u^+$  corrélé à la limite  $6S_{1/2} + 6P_{1/2}$  conduit aussi à la formation de dimères stables. L'interprétation repose sur l'existence de couplages radiaux de forte amplitude entre les états  $0_u^+$  corrélés aux deux limites asymptotiques,  $6S_{1/2} + 6P_{1/2}$  et  $6S_{1/2} + 6P_{3/2}$ . L'excitation par photoas-

---

2. Cette idée a évolué au cours de ces dix dernières années au point qu'il existe désormais des propositions théoriques de refroidissement par laser de molécules. Cf. par exemple la référence suivante : « Radiative force from optical cycling on a diatomic molecule », Shuman, ES and Barry, JF and Glenn, DR and DeMille, D., *Phys. Rev. Lett.* **103**, 223001 (2009).

sociation s'effectue à grande distance, au point tournant classique externe du niveau vibrationnel de l'état  $0_u^+$  corrélé sous la limite  $6S_{1/2} + 6P_{1/2}$ . Pour certains niveaux, l'existence de couplages conduit aussi à la présence d'un point de Condon à distance intermédiaire. Il est intéressant de noter que les molécules ainsi produites ne peuplent que l'état fondamental singulet.

Enfin, la spectroscopie de photoassociation a permis aussi d'étudier les propriétés de collisions entre atomes froids. L'efficacité du processus de photoassociation est proportionnelle au carré du recouvrement (facteur de Franck-Condon) entre la fonction d'onde radiale des deux atomes en collision et celle du niveau ro-vibrationnel excité. Pour les niveaux vibrationnels proches de la limite de dissociation, le facteur de Franck-Condon est proportionnel à la fonction d'onde radiale du fondamental prise au point tournant externe du potentiel excité. Ainsi, les modulations en intensité du signal de photoassociation donnent accès à la « structure nodale » de la fonction d'onde radiale initiale des deux atomes en collision. Nous avons mis en œuvre la spectroscopie par photoassociation d'atomes polarisés dans l'état  $f = 4$ ,  $m_f = +4$ , tels que deux atomes en collision soient corrélés adiabatiquement à l'état moléculaire triplet, et mesuré simultanément la longueur de diffusion de l'état triplet du césium et le paramètre asymptotique de la dépendance en  $1/R^6$  de l'interaction de Van der Waals de l'état fondamental.

Ces travaux ont eu une grande importance dans ma formation de chercheur. Sur le plan théorique, via notamment une collaboration fructueuse avec A. Crubellier, j'ai approfondi mes connaissances de physique moléculaire à travers l'étude des états de grande élongation produits par photoassociation. Ces expériences m'ont fait découvrir le domaine des atomes froids, aussi bien du point de vue des techniques expérimentales utilisées que des nombreux concepts physiques, comme celui des collisions froides. Je me suis rendu compte aussi à cette époque de l'importance des développements instrumentaux nécessaires pour des expériences telles que la spectroscopie de photoassociation : il nous est arrivé d'utiliser pour une même expérience une dizaine de faisceaux simultanément produits par des lasers aussi différents que des diodes, des lasers solides continus et des lasers à colorant impulsions. J'ai gardé de cette époque un intérêt pour les développements instrumentaux. Cette période a aussi été pour moi l'occasion de découvrir le travail en équipe, tel qu'il est requis sur ce type de montage. C'est toujours avec un grand plaisir que je me souviens des collègues ayant partagé ces moments, A. Fioretti, D. Comparat et B. Laburthe-Tolra. Enfin, l'étude des molécules froides est encore d'actualité au laboratoire Aimé Cotton et je me réjouis des avancées majeures réalisées récemment par les collègues au sujet du refroidissement des degrés de liberté interne du mouvement de vibration par impulsion laser femtoseconde. Les évolutions, les derniers développements et l'ensemble des résultats sont décrits, parmi tant d'autres choses, dans le mémoire d'habilitation à diriger des recherches de D. Comparat [Co08].

## Vue d'ensemble de mon activité de recherche

### *Microscopie de photodétachement*

En 2002, j'ai intégré le CNRS au LAC. J'y ai rejoint l'équipe de C. Blondel et C. Delsart pour travailler sur l'expérience de « Microscopie de photodétachement ». Le photodétachement des ions négatifs présente, parmi les réactions élémentaires en physique atomique et moléculaire, des caractéristiques particulières qui en font un terrain très propre à l'étude de processus et de lois fondamentales. En particulier, lors du photodétachement d'un ion négatif, l'électron n'est pas soumis à l'attraction d'un coeur atomique chargé mais neutre, et part quasiment comme un électron libre. En présence d'un champ électrique uniforme extérieur, son mouvement d'accélération est analogue à un mouvement de chute libre. De l'onde électronique émise, une moitié « tombe » directement vers le détecteur et l'autre moitié, partie en sens opposé, est réfléchiée par le champ. La coexistence de deux chemins possibles vers le détecteur produit un système d'anneaux d'interférence qu'on peut directement observer (cf. FIG. 1). L'observation de ce système d'interférences électroniques donne, du point de vue quantique, une vue directe du carré du module de la fonction d'onde transverse d'un électron atomique, avec un agrandissement de l'image qui peut atteindre trois ordres de grandeur pour seulement 0,5 m de vol dans un champ électrique uniforme. C'est le principe de la « microscopie de photodétachement », qui a été mise en œuvre en 1996 au laboratoire<sup>3</sup>.

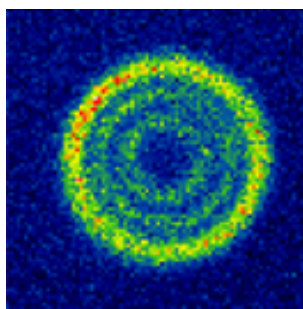


FIGURE 1 – *Interférogramme de photodétachement de l'ion  $\text{Si}^-$  obtenu à la longueur d'onde de 892213,28 pm dans un champ électrique de 427 V/m.*

Dès sa mise en fonctionnement, le microscopie de photodétachement a permis de mesurer les affinités électroniques avec une précision remarquable, de l'ordre de 15 mk<sup>4</sup>. Actuellement, en améliorant des points techniques comme la stabilisation du laser, la mesure de sa longueur d'onde et la connaissance de l'incertitude sur le champ électrique appliqué, nous avons mesuré très précisément l'affinité électronique du soufre, à  $2,5 \times 10^{-7}$  près, ce qui en fait l'affinité électronique la mieux connue expérimentalement. On peut aussi déterminer des paramètres spectroscopiques de structure interne des ions

3. « The Photodetachment Microscope », Blondel, C. Delsart, C. and Dulieu, F., *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3755 (1996)

4. 1 mk =  $10^{-3}$  cm<sup>-1</sup>

ou atomes, ou des écarts isotopiques dans les affinités électroniques. L'étude a aussi été étendue aux molécules, et a permis l'obtention d'interférogrammes électroniques suite au détachement de  $\text{OH}^-$  et  $\text{SH}^-$ .

Nous avons aussi travaillé sur l'influence éventuelle d'un champ magnétique sur les interférogrammes, qu'il soit transverse ou longitudinal, c'est-à-dire perpendiculaire ou parallèle au champ électrique. Nous avons montré expérimentalement l'invariance des interférogrammes avec le champ magnétique. Dans le cas longitudinal, ce résultat corrobore des travaux théoriques antérieurs. En ce qui concerne l'invariance en champ transverse, nous en avons donné une interprétation par un calcul perturbatif. Ici, l'action du champ comporte deux aspects. D'une part, les trajectoires, qui constituent l'enveloppe de la figure d'interférence, sont déplacées par la force de Lorentz. D'autre part, une différence de phase additionnelle, proportionnelle au flux du champ magnétique entre les deux trajectoires apparaît, ce qui induit un décalage des franges. Nous avons vérifié l'invariance au déplacement de Lorentz près du système d'anneaux (enveloppe et franges).

Dernièrement, nous avons aussi réalisé des développements instrumentaux. Nous avons changé le système de détection en position des électrons pour mettre en œuvre le photodétachement en régime impulsionnel. Ce régime ouvre la voie à de nouveaux sujets d'étude : en effet les lasers impulsionnels se prêtent aisément aux opérations non linéaires de multiplication et de mélange de fréquences, ce qui permet de changer beaucoup plus facilement de seuils ou d'ions. On peut s'attaquer au photodétachement d'ions plus lourds que ceux étudiés jusqu'à présent, en espérant y observer des effets de cœur, ou chercher à produire des interférogrammes par détachement au voisinage de seuils excités. Nous avons réalisé des expériences sur l'iode qui ont conduit à l'observation de premiers signaux d'interférence en impulsionnel. Nous avons ensuite effectué ce type d'expérience sur l'oxygène où nous disposons d'impulsions lasers plus intenses. Dans ces conditions et grâce à la grande sensibilité du microscope de photodétachement aux faibles variations d'énergie cinétique de l'électron, nous avons mis en évidence, à un niveau le plus bas jamais observé, l'effet « pondéromoteur ». Cet effet est lié à l'énergie cinétique d'agitation que l'électron peut acquérir rapidement sous l'effet du champ électrique oscillant, qui est intense au foyer d'un faisceau laser impulsionnel.

La mise au point de la microscopie de photodétachement en régime impulsionnel, la vérification de l'invariance des interférogrammes en présence de champ magnétique et l'amélioration de la précision des mesures d'affinités électroniques à quelques mk près font de notre instrument actuel un microscope de photodétachement de deuxième génération. Pour nos prochaines expériences, nous avons aussi approvisionné, assemblé et mis en service dernièrement une nouvelle source commerciale d'ions négatifs, qui nous permet de produire plus aisément des espèces variées du tableau périodique, comme les alcalins négatifs. Nous avons effectué des tests préliminaires sur K et P. Dans le cas du

---

P, nous avons pu enregistrer les premiers interférogrammes avec des atomes dans l'état excité. Nous espérons à l'avenir produire des atomes de plus en plus gros, allant jusque des états de Rydberg. Nous pensons que ces atomes nous permettront de mettre en évidence des effets de rediffusion par le coeur, en raison de l'orbite géante du mouvement électronique et du fort moment dipolaire. L'observation de cette rediffusion conférerait à la microscopie de photodétachement les qualités d'une véritable microscopie électronique interne de l'atome neutre.

#### *Instrumentation laser*

Une part importante de mon activité de recherche est aussi consacrée au développement et à la mise au point de sources cohérentes, accordables et stabilisées. J'ai débuté ce travail au cours de mon séjour post-doctoral de 2 ans à l'ONERA (Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales), effectué sous l'encadrement de M. Lefèbvre et E. Rosencher au Département de Mesures PHysiques à Palaiseau. Ces travaux se sont poursuivis assez naturellement au LAC, où l'instrumentation laser et l'optique sont depuis plus de 30 ans des techniques qui accompagnent les expériences de physique atomique et moléculaire. L'excitation, le contrôle et l'étude des propriétés des systèmes atomiques requièrent une émission cohérente. Que ce soit pour des expériences de photoassociation et de formation de molécules froides ou dans mes recherches concernant la microscopie de photodétachement, j'ai de nombreuses fois utilisé et même parfois perfectionné des lasers commerciaux, et j'ai aussi participé à la construction de sources originales répondant aux besoins d'expériences spécifiques.

La possibilité d'étendre le spectre couvert par des systèmes cohérents par conversion non-linéaire est connue depuis la découverte des lasers, mais ces quinze dernières années, des avancées technologiques majeures ont suscité un regain d'intérêt très important pour les oscillateurs paramétriques optiques (OPO). Ces sources non-linéaires ont bénéficié de l'apparition de nouveaux cristaux synthétiques fonctionnant par quasi-accord de phase (ppLN, ppSLT par exemple), du développement de lasers de pompe tout solide ayant de bonnes qualités spectrale et spatiale et de l'amélioration des traitements des optiques, en terme de tenue au flux notamment. C'est au cours de mon séjour post-doctoral à l'ONERA que je me suis familiarisé à ces techniques d'optique non-linéaire à travers l'étude d'oscillateurs paramétriques optiques (OPO) doublement résonnants à cavités duales. J'ai conservé aussi de ce séjour une collaboration étroite avec l'ONERA dont un des résultats majeurs a été la mise en évidence du verrouillage de phase dans les OPO. Parallèlement, j'ai démarré de nouveaux montages au LAC ; des OPO simplement résonnants (SROPO) à grande longueur de cohérence. Cette activité au laboratoire se déroule en collaboration avec F. Bretenaker. Nous nous attachons à développer des sources visibles émettant dans le domaine 550-700 nm réservé jusqu' alors aux lasers à colorant. Nous recherchons à la fois une grande accordabilité et une densité spectrale de bruit de fréquence très basse ; nous avons déjà construit des sources ayant une largeur

de raie de l'ordre du kHz.

Enfin, dans la perspective d'utiliser un laser impulsionnel pour le photodétachement, j'ai travaillé au côté de L. Cabaret pour finir la mise au point d'une chaîne laser impulsionnelle, délivrant des impulsions d'environ 20 ns. A nouveau, cette source est largement accordable, il est prévu de couvrir le spectre de 550 à 2000 nm, avec une grande finesse spectrale, proche de la transformée de Fourier de la largeur de l'impulsion. Cette chaîne laser, dont les premiers éléments ont été construits avant mon arrivée au LAC, comporte deux étages, un étage continu ou quasi-continu apportant la pureté spectrale et un étage impulsionnel délivrant une dizaine de mJ. Elle contient des éléments originaux comme un laser de pompage quasi-continu dont le milieu amplificateur est un cristal d'Yb :YAG (breveté), un oscillateur Nd :YAG injecté à durée d'impulsion ajustable (breveté), un OPO impulsionnel monomode constitué d'un cristal de KTP, stabilisé et doublé en fréquence. Plus récemment, nous avons achevé la réalisation d'une nouvelle cavité impulsionnelle Ti :Sa, comprenant quatre prismes à réflexion totale. Les propriétés spectrales de la lumière émise ont été caractérisées à long et à court terme, l'éventuelle dérive en fréquence durant l'impulsion nanoseconde a été mesurée.

*L'ensemble des travaux et résultats portant sur l'instrumentation laser seront décrits dans la partie 1 du manuscrit sous le titre « Sources optiques cohérentes pour la spectroscopie ». La partie 2 est ensuite consacrée aux recherches menées sur les « Développements de la microscopie de photodétachement ». Dans une troisième partie, j'ai inséré la première page de chacune de mes publications triées par ordre chronologique inverse.*

---

## Première partie

# Sources cohérentes pour la spectroscopie

## Sommaire

---

<b>1</b>	<b>Oscillateurs paramétriques opt. à grande longueur de cohérence pour le visible</b>	<b>17</b>
1.1	Motivation . . . . .	17
1.2	OPO : principe et éléments historiques . . . . .	18
1.2.1	Principe de l'oscillateur paramétrique optique . . . . .	18
1.2.2	Regain d'intérêt . . . . .	25
1.3	OPO « rouge » . . . . .	28
1.3.1	Régime quasi-continu . . . . .	28
1.3.2	Régime continu . . . . .	31
1.4	SROPO avec doublage de fréquence intracavité . . . . .	34
1.4.1	Une alternative : le doublage de fréquence . . . . .	34
1.4.2	Expériences et résultats . . . . .	35
1.5	Stabilisation en fréquence et mesure du bruit résiduel . . . . .	37
1.6	Effets Raman . . . . .	40
1.7	Quelques effets indésirables dans les SROPO continus . . . . .	41
<b>2</b>	<b>Verrouillage en phase des modes d'un oscillateur paramétrique optique</b>	<b>44</b>
2.1	Problématique . . . . .	44
2.2	Éléments théoriques . . . . .	45
2.3	DROPO dans le régime quasi-continu . . . . .	47
2.4	SROPO dans le régime continu . . . . .	49
2.5	Modélisation numérique de l'effet de saturation . . . . .	50
2.6	Conclusion et perspectives . . . . .	52
<b>3</b>	<b>Sources impulsionnelles monomodes</b>	<b>52</b>
3.1	Problématique . . . . .	52
3.2	OPO à cavités duales . . . . .	53
3.2.1	Les OPO nanosecondes : généralités . . . . .	53
3.2.2	Simulation numérique . . . . .	56
3.2.3	DROPO à cavité duales . . . . .	57



3.3	Chaîne impulsionnelle du LAC . . . . .	60
3.3.1	Description générale . . . . .	61
3.3.2	Laser de pompe nanoseconde à durée d'impulsion variable . . . . .	61
3.3.3	Ti :Sa monomode . . . . .	64
	<b>Références</b>	<b>68</b>

---

# 1 Oscillateurs paramétriques opt. à grande longueur de cohérence pour le visible

## 1.1 Motivation

Le développement laser au laboratoire se justifie par des performances qui ne sont pas accessibles aux instruments commerciaux. Pour des expériences de physique atomique et moléculaire, il est essentiel de bien contrôler la fréquence émise par les systèmes cohérents. Plus précisément, on peut définir trois caractéristiques du comportement en fréquence des sources lasers en continu, que l'on peut illustrer avec des exemples d'expériences du laboratoire :

1. la stabilité à long terme : pour l'expérience de « Microscopie de photodétachement » durant laquelle on accumule de faibles flux d'électrons produits par interaction laser-ions négatifs, il est essentiel d'avoir une source stable sur le long terme, typiquement durant trente minutes. On souhaite aussi connaître de manière absolue la fréquence du laser pour mesurer une grandeur physique, ici l'affinité électronique. Pour cette application, il est aussi préférable de disposer d'une source très accordable, pour changer d'ions à étudier ;
2. le balayage : on est souvent intéressé par changer lentement la fréquence du laser pendant un enregistrement. On peut citer l'acquisition de spectres de photoassociation comme ceux que j'ai enregistrés au cours de ma thèse. Une réalisation au laboratoire récente pour répondre à ce besoin est un laser quasi-continu saphir dopé titane (Ti :Sa) balayable sur  $6 \text{ cm}^{-1}$  [CCL01] ;
3. le faible bruit à court terme : pour les expériences de stockage d'information quantique, il est nécessaire de disposer de sources lasers présentant des largeurs de raie de l'ordre du kHz, pour manipuler de façon cohérente des superpositions atomiques de longue durée de vie. Notons qu'ici, parmi les systèmes atomiques intéressants, certains comme le praséodyme  $\text{Pr}^{3+}$  voient leurs transitions tomber dans la partie orange du spectre optique (vers 606 nm).

Dans la gamme spectrale 700-1000 nm, on dispose du laser à milieu amplificateur Ti :Sa qui répond aux trois besoins définis précédemment. Ces lasers existent sous des versions commerciales ou construites en laboratoire. Plus au delà dans l'infrarouge, jusqu'à  $4 \mu\text{m}$ , les oscillateurs paramétriques continus sont désormais des systèmes matures et fiables. Par contre, dans le domaine visible, on ne dispose que des lasers à colorants comme source très accordables. Ces lasers ont beaucoup été utilisés depuis les années 70 pour la spectroscopie. Ils peuvent être stabilisés aisément avec un « jitter » résiduel de l'ordre du MHz sur le long terme. Malgré tout, avoir une meilleure pureté spectrale est difficile car il faut corriger les bruits liés aux variations d'épaisseur du jet de colorant, dont les composantes de Fourier du bruit sont situées dans la gamme 10-50 kHz. Le

système d'asservissement doit pouvoir corriger des fluctuations sur une large gamme de fréquence [HLH82, JWK07]. Une autre façon d'atteindre la partie visible du spectre dans la zone rouge-orangé est d'utiliser les lasers solides et à semi-conducteurs. Cependant, ces sources sont en général peu accordables. Notons aussi que des efforts importants peuvent être consacrés au développement d'une source émettant à une seule longueur d'onde. Par exemple, dans le visible, plusieurs groupes travaillent à la production de rayonnement jaune, situé à proximité des raies D1 et D2 du sodium [MDS08, NON09]. De telles sources permettent de piéger et de refroidir cet alcalin.

Dans cette partie du manuscrit, je vais montrer que les oscillateurs paramétriques optiques sont des systèmes prometteurs pour réaliser une source continue largement accordable, tout solide et facilement stabilisable. Ces développements ont constitué en grande partie les travaux de thèse de T.-H. My [My10]. C'est maintenant O. Mhibik, en troisième année de thèse, qui poursuit ces recherches sous la direction de F. Bretenaker.

## 1.2 OPO : principe et éléments historiques

### 1.2.1 Principe de l'oscillateur paramétrique optique

Le but de cette section est de rappeler brièvement les concepts concernant les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) et de fixer les ordres de grandeur. La description du fonctionnement des OPO est en général classée suivant les caractéristiques temporelles du laser de pompe. On distingue trois régimes, le continu (CW), le nanoseconde (ns), où la durée des impulsions est typiquement comprise entre 5 et 50 ns, et celui des OPO picosecondes ou femtosecondes pompés de manière synchrone. L'essentiel des généralités abordées ici concerne le régime continu. Je reviendrai sur les particularités des OPO nanosecondes dans la partie 3.2.1 et sur les OPO femtosecondes dans la partie 2.1. Notons aussi que les OPO trouvent beaucoup d'applications dans le domaine de l'optique quantique, qui dépasse largement le cadre de ce travail. A titre d'exemple, la conversion paramétrique est couramment utilisée pour générer des paires de photons fortement corrélés.

#### a) Amplification paramétrique optique

L'amplification paramétrique, découverte en 1962 par J.A. Giordmaine [Gi62], est un processus non-linéaire d'ordre 2 dans lequel une onde intense  $\omega_p$ , dite pompe, amplifie une onde signal de plus basse fréquence  $\omega_s$ . Il apparaît aussi à la sortie du cristal non-linéaire une onde dite complémentaire ( $\omega_c$ ). Cette amplification fait intervenir la polarisation non-linéaire du milieu, dont l'amplitude est proportionnelle au champ électrique de l'onde pompe. Il n'y a pas de stockage d'énergie dans le matériau, l'énergie perdue par le faisceau de pompe est transférée intégralement (à l'absorption près). La fréquence des ondes vérifie la conservation de l'énergie :  $\omega_p = \omega_s + \omega_c$ .

Ce transfert d'énergie est maximum entre la pompe et les ondes amplifiées lorsque la condition d'accord de phase, donnée par  $\Delta\vec{k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_c = 0$  est vérifiée, où  $k_i = k(\omega_i) = n_i\omega_i/c$  avec  $n_i$  l'indice à la pulsation  $\omega_i$ . Cette expression traduit le caractère cohérent de l'amplification paramétrique, qui est efficace lorsque l'onde générée en  $z+\Delta z$  interfère constructivement avec l'onde générée un peu avant, en  $z$ . Cette relation sur les vecteurs d'ondes est aussi interprétée comme la conservation de la quantité de mouvement  $\hbar\vec{k}$  des photons [Bl80]. Le gain paramétrique définit l'accroissement relatif

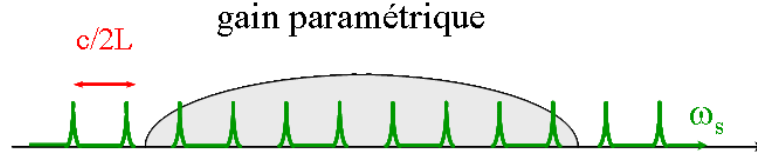


FIGURE 2 – Représentation de la bande de gain paramétrique et des modes longitudinaux d'une cavité linéaire simplement résonnante.

de l'intensité de l'onde signal dans le cristal. En ondes planes, pour un gain faible et dans l'hypothèse de la pompe non-déplétée, le gain en intensité varie comme [Sh84] :

$$G(\Delta k) = \frac{I_s(L)}{I_s(0)} - 1 \approx g^2 L^2 \text{sinc}^2 \frac{\Delta k L}{2} \quad (2)$$

$$g = 4\pi d_{eff} \sqrt{\frac{I_p(0)}{2\epsilon_0 c n_p n_s n_c \lambda_s \lambda_c}} \quad (3)$$

Dans ces expressions,  $n$  représente l'indice,  $L$  la longueur du cristal,  $\lambda$  la longueur d'onde,  $c$  la vitesse de la lumière,  $\epsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide et  $d_{eff}$  le paramètre qui caractérise l'efficacité non linéaire du cristal. Le facteur  $g$  est le gain. L'équation (2) fait aussi apparaître que la condition d'accord de phase n'est pas tout à fait stricte. Le gain est différent de zéro sur une largeur spectrale que l'on définit comme la bande de gain notée  $\Delta\omega$  (cf. FIG. 2). On trouve dans la littérature différentes définitions de cette bande de gain. Le critère  $\Delta k L = \pi$ , qui correspond à la largeur de la fonction  $(\text{sinc})^2 \frac{\Delta k L}{2}$ , est souvent utilisé, mais nous préférons prendre comme valeur  $\Delta k L = 2\sqrt{3}$ . Pour exprimer la bande de gain en fonction de la fréquence, il faut développer l'expression du désaccord de phase, à fréquence de pompe fixe :

$$\Delta k(\omega_s) = k_p - k(\omega_s) - k(\omega_p - \omega_s) \quad (4)$$

Le désaccord de phase, autour de la fréquence  $\omega_{s,0}$ , fait l'objet d'un développement limité que l'on poursuit à l'ordre 2 :

$$\Delta k(\omega_s) \approx -(k'_s - k'_c)(\omega_s - \omega_{s,0}) - \frac{1}{2}(k''_s + k''_c)(\omega_s - \omega_{s,0})^2 \quad (5)$$

Grandeur	énergie	durée	puissance	waist	intensité	gain
Symbole	$E$	$\tau$	$P$	$w_0$	$I$	$G$
CW	-	-	5 W	20 $\mu\text{m}$	400 kW/cm <sup>2</sup>	1,008
impulsionnel ns	10 mJ	10 ns	1 MW	1 mm	30 MW/cm <sup>2</sup>	1,72
impulsionnel fs	15 nJ	100 fs	150 kW	15 $\mu\text{m}$	20 GW/cm <sup>2</sup>	13,88

TABLE 1 – Ordres de grandeur mis en jeu dans le processus d'amplification paramétrique.

où  $k'_s = \frac{dk}{d\omega}(\omega_{s,0})$  et  $k'_c = \frac{dk}{d\omega}(\omega_p - \omega_{s,0})$ . On obtient ainsi :

$$\Delta k L(\omega_s) \approx -2\sqrt{3} \frac{(\omega_s - \omega_{s,0})}{\Delta\omega} - 3D(\omega_s - \omega_{s,0})^2 \quad (6)$$

où l'on a posé :  $\Delta\omega = \frac{2\sqrt{3}}{L(k'_s - k'_c)} = \frac{2\sqrt{3}}{L(v_{g,s}^{-1} - v_{g,c}^{-1})}$  et  $D = \frac{1}{6}(k''_s + k''_c)L$ .

On établit donc que la bande de gain  $\Delta\omega$  dépend de la différence de vitesse de groupe, c'est à dire de la dispersion à l'ordre 1. Plus on s'éloigne de la dégénérescence, valeur pour laquelle  $\omega_s = \omega_c = \omega_p/2$ , plus la bande de gain se rétrécit. Près de la dégénérescence, où les vitesses de groupe des deux ondes sont très proches, la bande de gain devient très large. Le terme d'ordre 2, dont la dépendance est donnée par  $D$ , devient aussi très important, évitant la divergence. La condition d'accord de phase permet d'exprimer la dépendance du gain en fonction de la fréquence. Je reprends ici l'exemple du gain petit signal, dans un domaine spectral éloigné de la dégénérescence :

$$G(\omega_s) \approx 1 + g^2 L^2 \left[ 1 - \frac{(\omega_s - \omega_{s,0})^2}{(\Delta\omega)^2} \right] \approx \exp \left[ g^2 L^2 \left( 1 - \frac{(\omega_s - \omega_{s,0})^2}{\Delta\omega^2} \right) \right] \quad (7)$$

D'autres expressions du gain en fonction de la fréquence, dans le régime de gain fort et à proximité de la dégénérescence, peuvent être calculées [Me07].

Enfin, pour fixer les ordres de grandeur mis en jeu en régimes continu et impulsionnel, je reporte les valeurs des grandeurs physiques pertinentes pour l'amplification paramétrique dans la table 1. Les applications numériques sont données pour des valeurs de  $n = 1,5$ ,  $\lambda = 2 \mu\text{m}$ ,  $L = 10 \text{ mm}$  et  $d_{eff} = 3 \text{ pm/V}$ .

## b) Accord de phase par biréfringence

Dans les matériaux isotropes, il n'est pas possible de vérifier simultanément la conservation de l'énergie et la conservation de l'impulsion car l'indice dépend de la fréquence des ondes. Une méthode usuelle de l'optique non-linéaire est d'avoir recours à des cristaux biréfringents dans lesquels les indices vus par deux ondes de même fréquence mais de polarisations orthogonales sont différents. Si une des trois ondes a une polarisation différente des deux autres, l'accord de phase peut être obtenu si la dispersion de l'indice est exactement compensée par la biréfringence. L'indice dépend à la fois de la longueur d'onde, de la température et de l'orientation du cristal. Ainsi, les couples de longueurs

d'onde émises sont fixés par l'orientation du cristal et sa température. La très large accordabilité ainsi obtenue est un avantage très important de la conversion paramétrique.

### c) Oscillateurs paramétriques optiques

La production d'un faisceau intense par conversion paramétrique nécessite de placer le cristal non linéaire dans un résonateur optique ; on multiplie alors le nombre de passages à travers le cristal et par conséquent l'amplification des ondes signal et complémentaire. Lorsqu'une seule onde résonne dans la cavité, on parle d'OPO « simplement résonnant » (SROPO). A faible puissance de pompe, le gain paramétrique est trop faible par rapport aux pertes par tour (diffraction, absorption, transmission...) : il n'y a pas d'oscillation. On définit une certaine puissance de pompe, appelée seuil, où le gain dépasse les pertes et l'oscillation démarre. Au delà de cette valeur, une part importante de l'intensité de pompe est convertie en ondes signal et complémentaire. Un exemple typique de l'évolution temporelle des ondes émises par un SROPO est présenté sur la figure 3. Il s'agit d'un enregistrement effectué au laboratoire avec une pompe fonctionnant en régime quasi-continu. Durant le transfert d'énergie, la puissance de pompe est atténuée au cours de l'interaction, le gain diminue : on parle de saturation du gain. Ainsi, il s'établit un état stationnaire où le gain dans le cristal équilibre exactement les pertes de la cavité sur un aller-retour. Le gain se clampe à la valeur du gain au seuil, de façon similaire à la différence de population dans les milieux lasers.

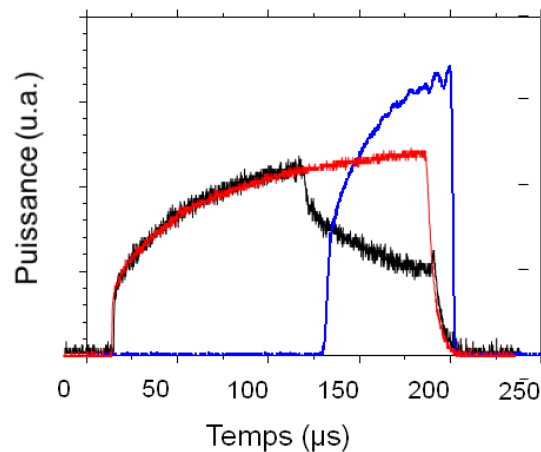


FIGURE 3 – Evolution temporelle du signal (en bleu), de la pompe incidente (en rouge) et de la pompe transmise (en noir) pour un SROPO quasi-continu, la puissance de pompe étant 1,4 fois au dessus du seuil.

Toutes les paires de photons signal et complémentaire peuvent être générées aléatoirement à partir des fluctuations quantiques du vide. L'oscillation démarre sur la paire de photons présentant un seuil minimum. Ainsi, les fréquences générées dépendent à la fois de la forme du gain paramétrique dans le cristal et de la dépendance spectrale des pertes de la cavité. Lorsque l'OPO est « doublement résonnant » (DROPO), les deux ondes

produites oscillent toutes deux dans la cavité optique, ce qui permet d'avoir un seuil plus bas, typiquement de 100 mW au lieu des quelques Watts nécessaires à l'oscillation simplement résonnante. Cependant, les DROPO sont instables et sont souvent multimodes, on observe l'émission simultanée de plusieurs fréquences (clusters), ceci en raison de la double condition de résonance. On schématise cet effet en utilisant un « diagramme de Giordmaine et Miller », représenté sur la figure 4. Ce diagramme représente les modes de cavité signal et complémentaire sur des axes dans des directions opposées. Les modes alignés selon une verticale sont ceux respectant la condition d'énergie et par conséquent autorisés à osciller. En raison de la finesse des cavités, cette condition n'est pas stricte et différents groupes de modes vont osciller en même temps, d'où la présence de « cluster » dans le spectre. On peut obtenir malgré tout un fonctionnement monomode sur une plage balayable en fréquence, tout ceci au prix d'une stabilisation complexe à mettre en oeuvre [LW93].

La situation a radicalement changé avec la réalisation de SROPO continus car l'émission produite est facilement monomode et ajustable. Comme nous l'avons décrit précédemment, en régime stationnaire, le mode qui subit les plus faibles pertes se met à osciller. En raison de la saturation de la pompe, aucun autre mode ne peut démarrer (cf. FIG. 2). Ce type de fonctionnement est à comparer à celui des lasers à élargissement homogène. Malgré tout, à partir d'une valeur de pompage d'environ 4,6 fois le seuil, il a été démontré par Kreutzer<sup>5</sup> que l'émission devenait multimode [Ha69].

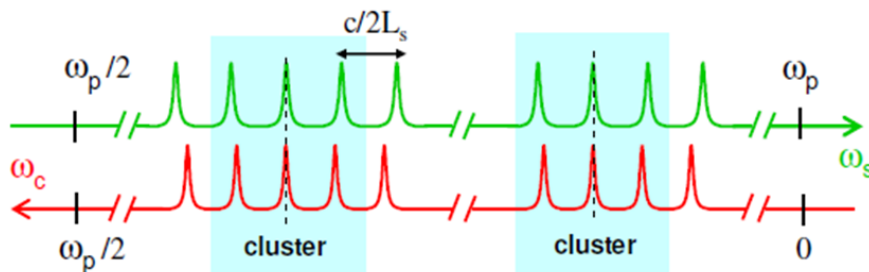


FIGURE 4 – Peignes de mode du signal et du complémentaire dans un DROPO, avec  $\omega_p = \omega_s + \omega_c$ . Par convention en optique non linéaire, l'onde signal d'un OPO est celle de plus courte longueur d'onde et vice versa pour l'onde complémentaire (« idler » en anglais).

Le seuil des OPO est calculable en régime stationnaire par une relation d'auto-consistance pour l'amplitude et la phase du champ électrique. Pour une cavité simplement résonnante, où sont négligées les pertes autres que celles introduites par un miroir de couplage de l'onde signal de coefficient de réflexion  $r = \sqrt{R} \exp i\phi$ , le seuil est donné

5. Proc. Joint Conf. Lasers and Opt.-Elect., p.2, 1969

par :

$$|r|^2 \cosh(g_{seuil}L) \exp(-2ikL_{opt}) = 1 \quad (8)$$

où  $L_{opt}$  est la longueur optique de la cavité. On déduit de cette relation une condition sur la phase qui traduit l'idée intuitive que le SROPO peut osciller lorsque le champ est résonnant avec la cavité. La condition sur l'amplitude fixe la valeur d'intensité de pompe nécessaire au franchissement du seuil. Pour une cavité dont le coefficient de réflexion est proche de 1, cette condition devient :

$$G = g_{seuil}^2 L^2 \approx 1 - R \quad (9)$$

Au dessus du seuil, on peut établir dans le cadre de l'« approximation du champ moyen » une relation implicite entre les nombres de photons de pompe, de signal de complémentaire généré ou perdu par tour. On considère toujours une onde signal résonnante subissant de faibles pertes exclusivement dues au miroir de couplage. Dans ce cas, la puissance du signal est quasiment constante sur tout le cristal non-linéaire et excède largement les puissances de la pompe et du complémentaire. L'amplitude du signal ne change que de quelques pour cent alors que celles de la pompe et du complémentaire varient très brutalement sur la longueur du cristal. Dans ces conditions, les équations couplées des 3 ondes se simplifient, le champ signal étant considéré constant. On utilise aussi la relation de Manley-Rowe qui traduit la conservation du nombre de photons. On établit que [Ha69] :

$$\frac{|A_S(L)|^2 - |A_S(0)|^2}{|A_S(0)|^2} = g^2 L^2 \text{sinc}^2(\sqrt{\kappa^2 |A_S(0)|^2} L) = \text{pertes}_{signal} = (1 - R) \quad (10)$$

Lorsque le signal est faible, la fonction sinus cardinal est égale à un, on retrouve l'expression du seuil. Au dessus du seuil, la puissance de signal circulant dans la cavité croît de telle sorte que le gain compense les pertes.

Ces calculs nous permettent de représenter sur la figure 5 l'évolution du nombre de photons signal et complémentaire produits par un SROPO continu en fonction du nombre de photons de pompe. Tous ces nombres de photons sont normalisés par rapport au nombre de photons de pompe au seuil et sont comptabilisés par unité de temps. Nous représentons aussi sur ce graphe le nombre de photons de pompe transmis et le rendement  $\eta$ . Celui-ci est défini comme le rapport du nombre de photons signal et complémentaire divisé par le nombre de photons de pompe.

Comme indiqué sur ce graphe, après le seuil, le rendement de conversion non linéaire croît très vite. Il atteint 100 % pour un nombre de photons de pompe normalisés au seuil de  $(\frac{\pi}{2})^2$ . A cette valeur, la pompe transmise est nulle. Au delà, ce rendement baisse car les ondes signal et complémentaire se recombinent pour générer à nouveau de la pompe.



En raison de l'absorption ou la diffraction, l'onde signal peut subir d'autres pertes par tour. On note les pertes totales par tour  $\epsilon_S$ ; la puissance signal émise en sortie de l'oscillateur est donnée par :

$$P_s = \frac{\lambda_p}{\lambda_s} \eta P_p \frac{(1 - R)}{\epsilon_S} \quad (11)$$

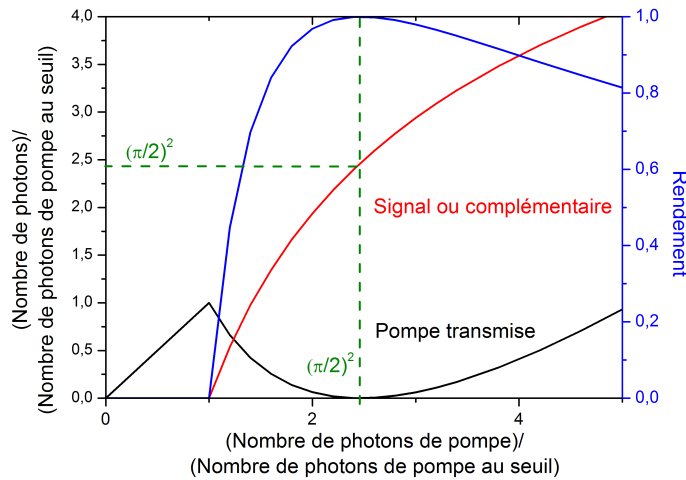


FIGURE 5 – Evolution dans un SROPO, en fonction du nombre de photons de pompe, du nombre de photons signal (en dehors de la cavité) ou complémentaire produits et du nombre de photons de la pompe transmise. Ces nombres de photons sont normalisés au nombre de photons de pompe au seuil et sont comptabilisés par unité de temps. On représente aussi le rendement de conversion.

Ces calculs permettent de fixer les ordres de grandeur des puissances produites par les SROPO. Ils donnent aussi une idée de l'optimisation de la réflectivité du miroir de couplage et de la longueur du cristal. En effet, à puissance de pompe disponible, ce n'est pas le SROPO avec le seuil le plus bas qui permettra d'extraire le plus d'énergie. Par exemple, ce résultat a été montré de manière amusante récemment, où un oscillateur a permis d'extraire 1,5 W avec un cristal de ppLN long de 2.5 cm et 0,5 W avec un autre de 5 cm [SBK09]. Enfin, pour aller au delà de « l'approximation du champ moyen », on décrit le comportement des OPO continus en résolvant exactement les équations couplées des trois champs [RF02]. Afin de prendre en compte le caractère gaussien des faisceaux et de choisir les focalisations optimales, on peut utiliser des abaques calculés numériquement [Gu98]. Enfin, il faut garder en mémoire que ces modèles ne sont valables que pour des OPOs monomodes, ce qui peut être discutable pour des puissances de pompe importantes.

### 1.2.2 Regain d'intérêt

Dès l'invention du laser au début des années 60, d'importantes recherches ont été menées pour convertir par non-linéarité la fréquence des ondes intenses produites. Le premier OPO a été proposé en 1962 par Kroll [Kr62] et réalisé en 1965 par Giordmaine et Miller [GM65]. La très grande accordabilité de ces sources cohérentes a vite été établie donnant la possibilité d'élargir les gammes spectrales accessibles [Ha69, GLS68, BOY69].

Cependant, les pionniers de l'optique non-linéaire ont rencontré beaucoup de difficultés techniques. L'efficacité de conversion paramétrique est proportionnelle à l'intensité de la pompe, de telle sorte que souvent les seuils de fonctionnement étaient proches du seuil de dommage des cristaux et des différentes optiques alors disponibles. Il était aussi rare de trouver des matériaux ayant à la fois la transparence requise, tout en étant biréfringents et de dimension suffisante. D'autre part, l'efficacité de conversion dépend aussi beaucoup des qualités spectrale et spatiale de la pompe, via l'adéquation du mode transverse de pompage et du/des mode(s) résonnant(s), et pendant longtemps, il était rare de disposer de sources ayant des performances convenables. Ainsi, après avoir été délaissées durant une vingtaine d'années, les sources paramétriques ont profité des avancées technologiques majeures et suscité un regain d'intérêt très important. Ces sources non-linéaires ont bénéficié :

- de l'apparition de nouveaux cristaux synthétiques, comme le LBO et BBO, et de la technique du quasi-accord de phase (ppLN, ppSLT par exemple) ;
- du développement de lasers de pompe tout solide ayant de grandes cohérences spectrale et spatiale (comme le Non Planar Ring Oscillator, inventé en 1985 [KB85], commercialisé actuellement par la société Innolight, et utilisé par exemple sur la chaîne de lasers associée à l'interféromètre VIRGO) ;
- de l'amélioration des traitements des optiques, en terme de tenue au flux notamment.

Afin d'illustrer l'importance des avancées technologiques pour les applications d'optique non-linéaire, je présente ici deux exemples. J'explique le principe du quasi-accord de phase et je présente des lasers de pompe quasi-continus comme ceux mis au point par L. Cabaret au LAC.

#### **Le quasi-accord de phase (Quasi-Phase Matching) :**

L'idée du quasi-accord de phase est apparue dès 1962 [ABD62]. Au lieu de chercher à rendre nul le désaccord  $\Delta k$ , il est remis à zéro périodiquement pour remettre les ondes en phase (cf. FIG. 6). Lorsque les ondes se propagent dans le cristal non linéaire, elles atteignent un déphasage maximal à une longueur dite de cohérence  $\Lambda_c = \pi/|\Delta k|$ . Si à cette distance, on inverse le signe du coefficient non-linéaire, on change le sens du transfert d'énergie entre les ondes. Les interférences destructives qui ont normalement lieu à chaque longueur de cohérence sont supprimées, et la puissance des ondes générées peut croître continûment à la traversée du milieu non-linéaire, mais avec une efficacité

réduite à  $d_{eff} \times \frac{2}{\pi}$ . La condition de quasi-accord de phase s'écrit :

$$\Delta k = k_p - k_s - k_c - K \quad (12)$$

où  $K = \frac{2\pi}{\Lambda}$  avec  $\Lambda$  le pas du réseau formé par les domaines retournés. Cette méthode a

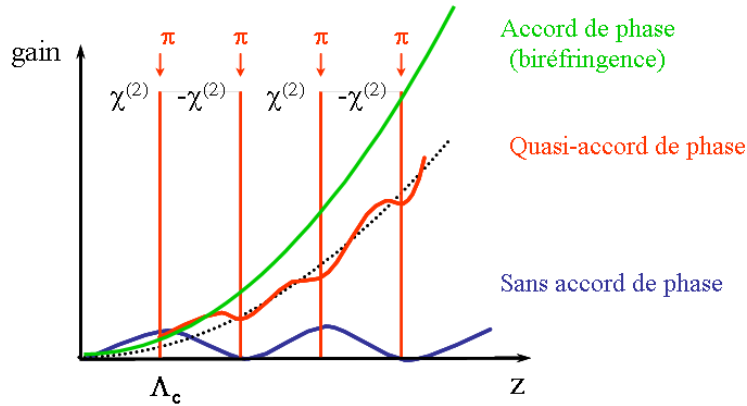


FIGURE 6 – Principe du quasi-accord de phase.

été appliquée avec succès en 1992 pour le doublage de fréquence à Stanford [FMJ92]. A partir d'un cristal ferro-électrique, comme le niobate de lithium (LN), l'inversion de la non-linéarité est réalisée par l'application d'un champ électrique intense, de l'ordre du kV/cm. La période du réseau ainsi créé peut aller de quelques dizaines de  $\mu\text{m}$  à quelques  $\mu\text{m}$ . En revanche, avec ces techniques, l'épaisseur des cristaux est généralement de quelques mm, ce qui limite le diamètre des faisceaux pouvant s'y propager. Par contre, il n'y a pas de limitation sur la largeur du cristal qui peut contenir côte à côte plusieurs réseaux de pas différents, typiquement 5 [MEF95]. Ces cristaux sont appelés pp (comme pour le ppLN dans le cas du Niobate de Lithium) pour « periodically poled ». Ces matériaux permettent de remplacer l'accord de phase par biréfringence lorsque celui-ci n'est pas possible. On utilise ainsi les directions principales des cristaux, où le  $d_{eff}$  peut être important (ex.  $d_{33}$  dans le  $\text{LiNbO}_3$ ). De plus, les trois ondes se propagent avec la même polarisation et il n'y a pas de décalage spatial comme celui induit en présence de biréfringence. Cette technologie est maintenant très mature et appliquée à de nombreux ferro-électriques. Il y a de telles possibilités de modulation et de façonnage des structures spatiales que l'on peut parler d'ingénierie du quasi-accord de phase. Par exemple, on peut imprimer des structures quasi-périodiques, permettant dans un même matériau la conversion paramétrique et le doublage de fréquence [BAM98]. On peut citer aussi les cristaux de type « Fan-out », c'est-à-dire en éventail, où la période du réseau change continûment dans la largeur. On peut alors modifier la longueur d'onde sans changer la température du cristal [PKB98]. Le quasi-accord de phase est aussi réalisé avec succès dans les guides d'ondes [FJD98].

### Les lasers de pompe quasi-continus du LAC :

Lors du démarrage d'un laser de classe B, où le temps de récupération du système  $\tau$

est plus grand que la durée de vie de cavité  $\tau_{cav}$ , l'émission présente des oscillations de relaxations. Un laser Nd :YAG (système à 4 niveaux,  $\tau = 240 \mu s$ ) constitué d'une cavité de 50 cm de long comprenant 5% de pertes (soit  $\tau_{cav} = 33 ns$ ) fonctionnant 5 fois au-dessus du seuil illustre typiquement un laser obéissant à cette dynamique. Lorsque l'on insère dans une telle cavité un cristal non-linéaire doubleur de fréquence, on introduit un nouveau couplage non-linéaire entre les équations d'évolutions des populations de la transition laser et de la lumière produite. L'impulsion est lissée, les oscillations de relaxation sont remplacées par un créneau de lumière (cf. l'évolution temporelle de la pompe représentée en rouge sur la figure 3). Comparé à un laser continu dont on modulerait en intensité la lumière émise, ici, la puissance crête produite peut être assez importante, jusqu'à 70 W dans le cas de l'Yb :YAG pompé par diode et doublé. Cependant, la puissance moyenne est faible, de quelques centaines de milliwatts. Ce régime quasi-continu a un intérêt particulier dans les cas où l'application demande une forte puissance de pompage mais que des problèmes thermiques se posent au niveau du milieu pompé, comme pour certains cristaux non-linéaires ou milieux lasers solides. Au laboratoire, L. Cabaret a construit deux lasers de pompe quasi-continu. Le premier fonctionne avec comme milieu amplificateur un cristal de Nd :YAG [CPC00] et le second avec un cristal d'Yb :YAG [Ca09], pompé quasi longitudinalement par deux empilements de diodes de 300 watts assemblés suivant un schéma original et breveté. De ce fait, nous disposons au laboratoire de deux sources de pompage quasi-continus présentant de fortes puissances crêtes : une émettant à 532 nm et l'autre accordable entre 510 et 520 nm. Les durées d'impulsion produites varient entre 200 à 400  $\mu s$  ; le faisceau est monomode et de bonne qualité, le facteur  $M^2$  étant de 1,06.

Ainsi, grâce à de nombreux développements technologiques, les OPO sont devenus ces quinze dernières années des systèmes matures et très utilisés pour concevoir de nouvelles sources de lumière. Un résultat important, datant de 1993, est la réalisation du premier SROPO continu [YEB93a] avec un cristal de KTP. Peu après sont apparus des OPO utilisant des cristaux fonctionnant en quasi-accord de phase, en régime impulsionnel [MEF95] puis en régime continu [BDA96b]. En continu, l'émission est stable, très accordable et la conversion est très efficace pouvant conduire à une déplétion de la pompe de 93 % [BDA96a]. Par ailleurs, l'utilisation d'une pompe infrarouge monomode a aussi permis de produire deux ondes monomodes [SKS97]. Dans le même temps, des progrès importants ont été réalisés sur la stabilisation et le balayage des DROPO, dont l'émission peut être accordée sur 10 GHz et asservie avec une largeur de raie de l'ordre du kHz [ATB98]. L'obtention de seuils plus bas a aussi permis de varier les méthodes de pompage : l'OPO peut être pompé par diode [KLM99], par fibre [GKW02] ou inséré dans une cavité laser Ti :Sa [ETD98a]. D'autres cristaux périodiquement polarisés ont fait leur apparition : le ppKTP [ETD00], le ppRTA [ETD98b] et le ppSLT [KLM98], ce qui permet de disposer de différents matériaux, avec différentes propriétés optiques plus ou moins adaptées aux applications voulues (transparence, indices). Les efficacités

de conversion sont aussi de plus en plus fortes et des systèmes produisant jusque 5 W ont été mis au point [HS06a]. On dispose désormais de sources commerciales pompées par fibre, délivrant facilement 1 W dans l'infrarouge moyen, comme l'Argos développé par la société Aculight. Récemment aussi, un groupe finlandais a étudié différentes architectures innovantes : il s'agit d'un OPO continu dans lequel on insère un réseau de diffraction [VSP09] ou un réseau de Bragg [VSH10] afin d'assurer la sélection spectrale. Ils ont aussi décrit un OPO très accordable pompé avec un laser continu Ti :Sa [SVH10].

## 1.3 OPO « rouge »

### 1.3.1 Régime quasi-continu

Les systèmes paramétriques nous ont paru suffisamment matures pour que nous décidions de construire un OPO pompé par un laser émettant à 532 nm afin d'atteindre la partie rouge du spectre visible. Nous avons choisi une configuration simplement résonnante pour obtenir aisément une émission monomode. Dans une telle configuration, nous espérons aussi transférer les éventuelles fluctuations en fréquence de la pompe sur l'onde non résonnante. Cependant, deux difficultés apparaissent pour générer par conversion paramétrique du visible à partir d'un laser de pompe vert. Le rayonnement complémentaire se situe dans l'infrarouge moyen, aux alentours de  $4,35 \mu\text{m}$ , où les cristaux peuvent présenter de l'absorption. De plus, les fréquences émises sont très éloignées de la dégénérescence, le seuil d'oscillation paramétrique en est d'autant plus élevé (cf. les équations 2 et 3). Malgré tout, lorsque nous avons débuté ces expériences, il est apparu en laboratoire puis commercialement un nouveau cristal non-linéaire qui nous a semblé surpasser ces contraintes : le MgO :ppSLT, c'est-à-dire le tantalate de lithium stochiométrique polarisé périodiquement, dopé MgO. Ce cristal présente une absorption faible dans la région 3-4  $\mu\text{m}$  [YKN04], tout au moins plus faible que celle observée pour le ppLN [VHB03]. Par ailleurs, le dopage de ce cristal [KRH04] permet une relative immunité aux dommages photoréfractifs, tout comme la composition stoechiométrique (50 % de Li et 50 % de TaO<sub>3</sub>). L'effet photoréfractif consiste en une modification locale de l'indice d'un milieu par l'onde lumineuse incidente qui l'éclaire. En conséquence, le ou les faisceaux lumineux intenses modifient les conditions de sa propagation et en général, le fonctionnement de l'OPO est moins efficace, voire interrompu. Ces effets parasites ne sont pas permanents et sont éliminés en chauffant le cristal. De manière plus générale, les effets photoréfractifs sont diminués lorsque le cristal est chauffé à une température dépassant les 100 °C [MEF95]. Enfin, le coefficient de couplage non-linéaire  $d_{eff}$  est assez important, de 11 pm/V, ce qui permet d'envisager sans trop de difficultés le fonctionnement simplement résonnant. Nous avons construit notre premier SROPO émettant dans le visible [BBD06] en utilisant un pompage quasi-continu, afin de disposer à la fois d'une forte puissance crête (30 W) et d'une puissance moyenne relativement faible (200

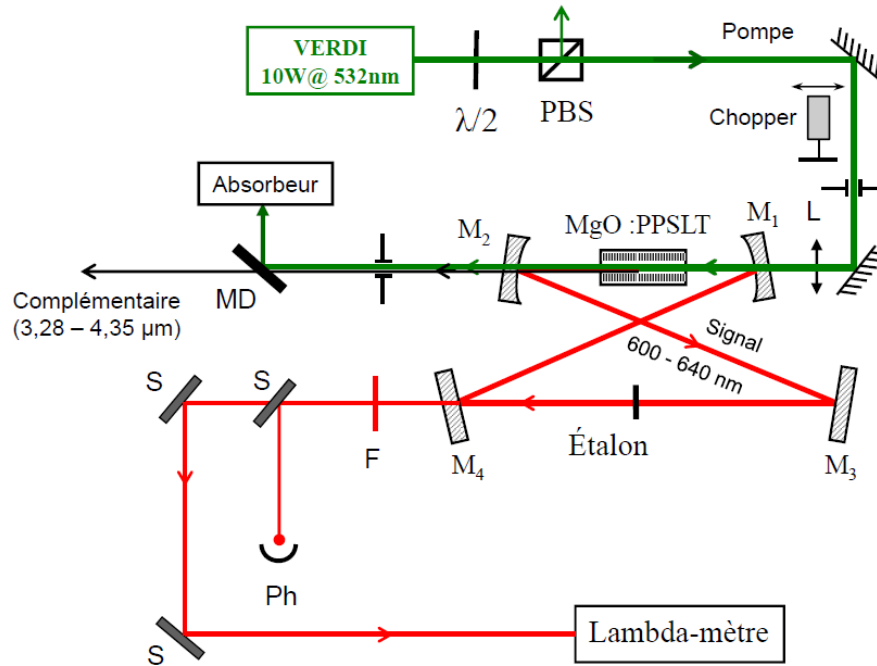


FIGURE 7 – Schéma du montage expérimental faisant apparaître la pompe, ici continue, et le SROPO. PBS : cube polariseur, L : lentille, MD : miroir dichroïque, S : séparatrice, F : filtre et Ph : photodiode.

mW). Nous avons utilisé le laser quasi-CW du LAC émettant à 532 nm et produit un rayonnement accordable entre 619 et 645 nm. Le montage est similaire à celui schématisé sur la figure 7, mais avec un laser laser de pompe Q-CW. Comme nous le verrons par la suite, nous avons construit différentes variantes d'oscillateurs, qui ont tous des éléments communs que nous listons ici :

1. nous avons choisi de construire une cavité en anneau de type « papillon », avec 4 miroirs dont 2 concaves de rayon de courbure 150 mm. Le waist entre les deux miroirs concaves est assez étroit, de l'ordre de  $50 \mu\text{m}$  ; on y inclut le cristal non-linéaire dans la zone de forte intensité. L'autre bras est collimaté, avec un faisceau plus large (environ  $500 \mu\text{m}$ ) ce qui permet d'y insérer sans difficulté des éléments optiques comme un étalon. Le choix des distances est optimisé par un calcul de matrice ABCD et nous aboutissons à une cavité dont la longueur est de l'ordre du mètre. Comme conseillé dans la littérature [BDA96a], l'onde résonnante est progressive afin d'éviter des instabilités en fréquence ;
2. les angles entre les bras de la cavité sont choisis petits pour minimiser l'astigmatisme causé par la réflexion à angle non nul sur les miroirs sphériques. Nous nous sommes limités à des angles d'incidence de  $5^\circ$  ;
3. un point clé pour l'obtention de l'oscillation paramétrique en continu est le recouvrement spatial des faisceaux signal et de pompe dans le cristal. De plus avec des faisceaux gaussiens, comme dans le cas du doublage de fréquence [BK68], le

rendement de conversion non-linéaire dépend du ratio entre la longueur optique du cristal et la taille du faisceau incident, ceci en raison de la diffraction et éventuellement de la double réfraction. L'optimisation de la taille des faisceaux est calculée dans la littérature [GWF82, Gu98] et présentée sous forme d'abaques. Nous choisissons un mode propre pour le signal de  $37 \mu\text{m}$  et nous focalisons la pompe sur  $50 \mu\text{m}$  au centre du cristal ;

4. nous utilisons un cristal de  $\text{MgO}:\text{ppSLT}$  approvisionné auprès de la société HC-Photonics (Taiwan). Sa dimension est de  $30 \times 3 \times 0,5 \text{mm}^3$  et il comporte 5 réseaux dont le pas varie de  $11,55$  à  $12,95 \mu\text{m}$ . Ce cristal est traité anti-reflet. Afin de faire varier les longueurs d'onde émises, il est inséré dans un four, commercial ou réalisé au laboratoire. La température du cristal est ainsi variée de  $30$  à  $230 \text{ }^\circ\text{C}$  avec une précision approchant le  $1/100 \text{ }^\circ\text{C}$  ;
5. le traitement des miroirs est assez contraignant. Le gain étant faible, ils présentent peu de pertes ( $1 - R$ ) à la longueur d'onde résonnante. On utilise une réflectivité supérieure à  $99,8 \%$ . La transmission doit être élevée à la longueur d'onde de pompe ( $>0,95$  @  $532 \text{ nm}$ ). Enfin, pour éviter le caractère doublement résonnant, qui peut conduire à des instabilités en fréquence, la réinjection par tour de rayonnement complémentaire doit être inférieure à  $0,01\%$  [YEB93b]. Ainsi, la transmission entre  $3$  et  $4,5 \mu\text{m}$  est choisie supérieure à  $95 \%$  ;
6. on minimise les variations de longueur de la cavité en montant les supports des optiques sur une plaque d'INVAR. Un couvercle est aussi ajouté autour de la cavité pour minimiser les variations de longueurs optiques dues aux mouvements d'air ;
7. enfin, afin de ne pas changer les conditions de fonctionnement de la pompe, on change l'intensité du pompage en intercalant avant la cavité, une lame  $\lambda/2$  et un cube polariseur utilisé en transmission. La bonne qualité spatiale du laser de pompe est ainsi conservée.

Ajoutons que l'absence de fluorescence nécessite un réglage préalable de la cavité avec un laser d'alignement.

Nous obtenons dans la partie rouge du spectre visible une émission quasi-continue, alors que ce domaine n'avait été atteint qu'en régime impulsif [TKG05] avec un laser de pompe vert. L'évolution temporelle de l'impulsion est reportée sur la figure 3. Vers  $640 \text{ nm}$ , la source délivre  $1,2 \text{ W}$  durant  $70 \mu\text{s}$ . Le spectre de la lumière produite est analysé par un  $\lambda$ damètre à 6 coins de Fizeau commercial (WSU, HighFinesse). L'émission est rendue facilement monomode longitudinalement en insérant un étalon de silice de  $3 \text{ mm}$  d'épaisseur. Cette émission peut rester monomode même avec une pompe multimode. Dans ces conditions, le rayonnement complémentaire non analysé dans cette expérience est bien sûr multimode. Par contre, à la fois le seuil et la puissance émise dans le visible varient fortement en fonction de la longueur d'onde. De  $640$  à  $601 \text{ nm}$ , le seuil passe de  $2,85$  à  $13,7 \text{ W}$  et la lumière générée pour une puissance de pompe fixe

est de plus en plus faible (cf. FIG. 8). Lorsque la longueur d'onde signal varie de 640 à 601 nm, celle du complémentaire augmente de 3,15  $\mu\text{m}$  à 4,6  $\mu\text{m}$  ; nous interprétons la baisse d'efficacité observée par un accroissement de l'absorption dans l'infrarouge.

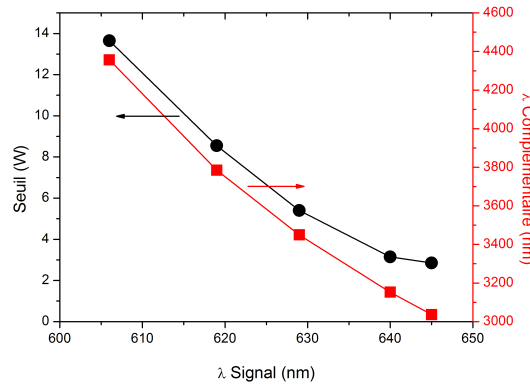


FIGURE 8 – Evolution du seuil du SROPO (en noir) et de la longueur d'onde complémentaire (en rouge) en fonction de la longueur d'onde du signal.

### 1.3.2 Régime continu

Nous avons ensuite fait fonctionner l'OPO en régime continu [MMB07]. La pompe est maintenant un laser commercial, le Verdi 10W (Coherent), qui émet aussi à 532 nm. Il s'agit d'un laser en anneau comportant un doublage intracavité. Le milieu à gain est un cristal de Nd:YVO<sub>4</sub> pompé par diode. Par construction ce laser est monomode et les températures de ces différents éléments (cristal doubleur, diode de pompe, support mécanique...) sont stabilisées. Ce laser présente une intensité constante (avec des variations <1%), une bonne qualité de faisceau et une fréquence d'émission relativement stable (les variations à court terme sont inférieures à 10 MHz). La cavité OPO est similaire à la précédente. Comme amélioration, nous avons monté un miroir sur une cale piézoélectrique pour contrôler finement la longueur de cavité et éventuellement stabiliser la fréquence d'émission par un asservissement. Une photographie de l'OPO en fonctionnement est reproduite sur la couverture du magazine « Laser Focus World » du mois d'octobre 2008 (cf. FIG. 9).

Dans un premier temps, nous avons optimisé la géométrie de la cavité en modulant en intensité le faisceau de pompe afin de retrouver les conditions du régime quasi-continu. Lorsque nous arrêtons cette modulation, le réglage optimum des distances entre les miroirs de la cavité diffère quelque peu. Cette variation du réglage entre le régime transitoire et régime stationnaire est attribuée à des effets thermiques. En effet, l'absorption par le cristal se traduit par un chauffage qui présente un gradient transverse de température, proportionnel à la distribution en intensité des faisceaux. Ce gradient est modélisable et





FIGURE 9 – Photographie reproduite de la couverture du magazine « Laser Focus World » d’octobre 2008 montrant le SROPO émettant dans le rouge.

se traduit par un effet de lentille thermique [BWB95]. Pour le fonctionnement en régime continu, nous augmentons la distance entre les miroirs concaves. Le seuil est assez élevé, d’environ 4W, et seuls deux réseaux sur cinq du cristal ont pu générer de la lumière paramétrique, à 640 et 635 nm. Ensuite, même en optimisant le couplage de la cavité (on fixe une des transmissions à 1,7% à 640 nm), la puissance générée par cet oscillateur est limitée à une centaine de mW de rouge pour 10 W de pompe !

Nous savons maintenant expliquer ce mauvais rendement pour les courtes longueurs d’onde. Initialement nous pensions que la seule absorption présente dans le cristal se situait dans le domaine infrarouge moyen. En réalité, son effet sur le fonctionnement de l’OPO est négligeable car ce rayonnement n’est pas stocké dans la cavité. Par contre dans le domaine visible, l’absorption dans le cristal non-linéaire croît du rouge vers le bleu et devient significative vers 600 nm. L’existence de cette absorption résiduelle (environ 4% sur 30 mm de cristal), aux longueurs d’onde de pompe et de l’onde résonnante, rend très inefficace la conversion paramétrique.

Malgré ces difficultés, l’émission obtenue est très stable, la variation en intensité sur 100 secondes est d’environ 1%. Le tenue au flux du cristal s’est avérée aussi très satisfaisante. Il est assez remarquable de n’observer aucune altération du cristal illuminé par 10 W de lumière verte focalisés sur 50  $\mu\text{m}$  et ceci même à basse température (environ 30 °C). De tels essais avec du ppLN ont été catastrophiques. Les propriétés spectrales

de l'oscillateur sont aussi très bonnes. L'émission est facilement monomode et la dérive de fréquence est limitée à 5 MHz par minute vers le rouge. A plus long terme, l'étalon contraint l'excursion en fréquence à environ 800 MHz. On accorde par saut de cavité la longueur d'onde d'émission sur 27 GHz en tournant l'étalon. Nous avons stabilisé l'émission avec un sigmamètre [JP75], qui est un interféromètre maison qui permet à la fois d'asservir et de balayer la longueur d'onde d'un laser sans appliquer de modulation. La stabilisation à long terme du sigmamètre est elle-même assurée par un laser HeNe commercial. Les sigmamètres du laboratoire permettent ainsi de stabiliser des sources accordables à long terme (typiquement l'heure) avec une précision de l'ordre du MHz. Nous avons utilisé cet instrument avec l'OPO afin de réduire ses fluctuations de fréquence à quelques MHz durant quelques minutes. Au cours de cette expérience, nous avons aussi enregistré les fluctuations à long terme en fréquence de la pompe, qui s'avèrent importantes (plus de 50 MHz). Les variations de fréquences de la pompe sont donc rejetées vers l'onde complémentaire.

Nous avons ensuite caractérisé les bruits en fréquence de la source. Tout d'abord, nous enregistrons en fonction du temps l'évolution en fonctionnement libre de la longueur d'onde du SROPO et la comparons à celle d'un laser à colorant commercial (modèle 380A de chez Spectra Physics) fonctionnant avec la Rhodamine 6G (cf. Fig. 10.a). Sur une dizaine de minutes, l'écart type des fluctuations de fréquence de l'OPO est de 9 MHz, plus faibles que celles du laser qui s'élèvent à 40 MHz. De plus, on remarque que la bande passante des fluctuations de l'émission du laser est bien plus importante que celle de l'OPO. Afin de quantifier ces fluctuations, nous réalisons une mesure de densité spectrale de bruit  $S_f(\nu)$  exprimée en  $\text{Hz}^2/\text{Hz}$ . Cette mesure permet de savoir comment les variations de fréquence se répartissent en fonction des composantes de Fourier. Pour ce faire, on utilise une cavité Fabry-Perot comme discriminant (avec une finesse de 350 à 620 nm) et une photodiode rapide. On ajuste la fréquence de l'OPO ou du laser sur un flanc de transmission, à peu près à mi-hauteur, et on enregistre les variations du signal transmis sur quelques ms. Les mesures de densité spectrale de bruit pour les deux sources en fonctionnement libre sont reportées sur la figure 10.b. Comme les cavités sont libres durant cette expérience, les enregistrements n'ont été effectués que sur des temps courts. A haute fréquence, la limite est bornée par la bande passante de la cavité Fabry-Perot, à environ 3 MHz. Comme attendu, le spectre de bruit du laser à colorant présente une résonance assez large, située dans la gamme 20-50 kHz. Cette résonance est attribuée aux vibrations de la buse dans laquelle le colorant circule à haute pression. Concernant l'OPO, on reporte les enregistrements effectués avec et sans cavité Fabry-Perot. Les densités spectrales de bruit sont identiques, limitées par la fenêtre de FFT utilisée. Cette mesure est donc une borne supérieure des fluctuations de fréquence de l'OPO. Elles sont plus faibles que celles du laser à colorant, d'au moins trois ordres de grandeur dans la gamme 10 - 100 kHz.

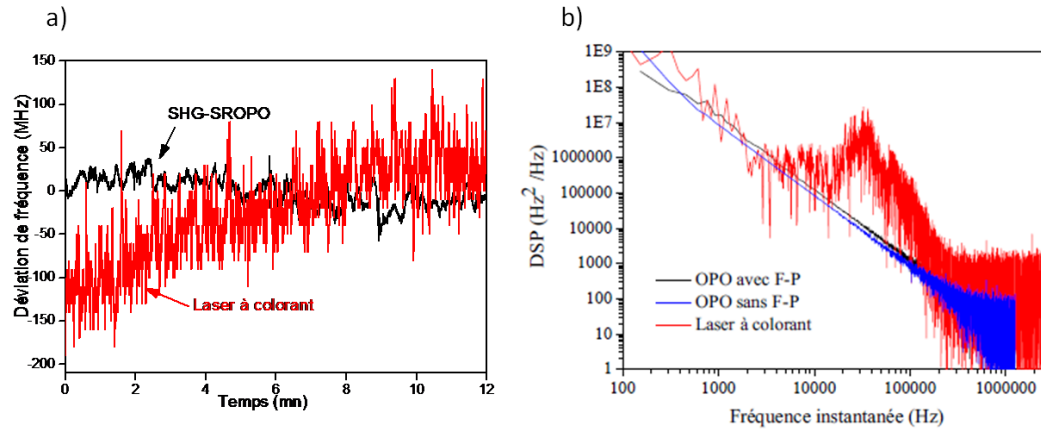


FIGURE 10 – a) Evolution temporelle des variations de fréquences du SHG-OPO et du laser à colorant commercial (Spectra 380a). b) Le bruit de l'OPO mesuré avec la cavité Fabry-Perot (en noir), mesuré sans cavité Fabry-Perot (en bleu) et le bruit du laser à colorant commercial (en rouge).

## 1.4 SROPO avec doublage de fréquence intracavité

L'ensemble de résultats concernant le SROPO émettant dans le visible, en quasi-continu et en continu, nous confortent dans l'idée d'utiliser un OPO pompé par un laser solide afin de réaliser une source à bas bruit de fréquence. Malgré tout, nous nous sommes heurtés au problème d'absorption des rayonnements visibles par le cristal de MgO :ppSLT, ce qui nous a empêché d'extraire suffisamment de puissance de la cavité.

### 1.4.1 Une alternative : le doublage de fréquence

Une autre façon d'atteindre la partie visible du spectre consiste à construire un OPO émettant dans le proche infrarouge et de doubler le rayonnement complémentaire dans une seconde cavité résonnante [PCB01] [SMW02]. Dans ces références, les auteurs présentent une chaîne très accordable, la longueur d'onde varie de 550 nm à 2830 nm. Cette source a été utilisée pour des expériences de spectroscopie d'ions dans des solides. Cependant, le système est relativement compliqué et l'efficacité de l'ensemble de la chaîne est assez faible.

Une autre solution consiste à effectuer le doublage en fréquence de la lumière infrarouge qui résonne dans la cavité OPO. On s'attend alors à de meilleurs rendements qu'avec une cavité externe [GR72] [CT71] [MKC95]. Le doublage intracavité dans un OPO a été testé avec succès dans le régime nanoseconde [CT71], picoseconde [CKM94] et femtoseconde [ET93]. En continu, une source tout solide émettant à 629 nm a été réalisée avec un cristal de ppLN, structuré de telle sorte que la conversion paramétrique et le doublage soient réalisés simultanément [BAM98]. Ce système est très efficace mais

l'accordabilité est réduite car les deux sections du cristal, obéissant à des conditions d'accord de phase différentes, sont dans un même four et donc portées à une même température.

### 1.4.2 Expériences et résultats

Nous avons décidé d'étudier et d'optimiser le doublage intracavité dans un OPO pour produire le rayonnement visible [MDB08]. Nous avons construit un oscillateur qui génère un rayonnement complémentaire centré autour de 1212 nm et un rayonnement signal autour de 948 nm. Ces longueurs d'onde sont générées à nouveau dans un cristal de MgO :ppSLT dont le pas du retournement périodique est cette fois égal à  $7,97 \mu\text{m}$  [SFS07] [SFE07]. Afin de conserver l'idée de transférer les bruits de la pompe sur l'onde non-résonnante, nous choisissons ici de recycler le complémentaire dont la fréquence sera doublée dans la cavité. Par la suite, nous désignons ce montage sous le nom du SHG-OPO pour « Second Harmonic Generation Optical Parametric Oscillator ».

La cavité que nous avons construite est très similaire à la précédente, signalons néanmoins quelques modifications :

1. nous utilisons quatre miroirs concaves de rayon de courbure de 150 mm. Cette géométrie permet de réduire le waist dans le deuxième bras de la cavité où nous plaçons le cristal doubleur. A cet endroit, l'intensité du faisceau résonant est augmentée et le rendement de doublage est meilleur ;
2. nous choisissons comme cristal doubleur un cristal de BBO, dont l'accord de phase par biréfringence est réalisé en type I. La longueur maximale utilisée est de 10 mm en raison de la double réfraction. Les deux faces sont traitées anti-reflet pour le rayonnement fondamental et l'harmonique deux ;
3. les miroirs ont toujours des traitements sophistiqués, optimisés pour les trois ondes intervenant dans la conversion paramétrique. La transmission d'un des miroirs est importante dans le visible pour extraire efficacement le rayonnement rouge produit.

Avec quatre miroirs concaves, l'optimisation de la cavité est plus délicate et le seuil d'oscillation atteint environ 4W. Malgré tout, la présence du cristal doubleur n'affecte quasiment pas ce seuil. Pour 7,6 W de pompe, nous produisons en sortie du cristal de BBO jusque 485 mW à 606 nm. A cette valeur de pompage, on estime la puissance de rayonnement complémentaire dans la cavité à 180 W. Ainsi, le rendement de doublage est faible, d'environ 0,3 %. Le doublage en fréquence de l'onde résonante n'ajoute quasiment pas de pertes, il ne modifie pas le comportement de l'OPO. Par ailleurs, comme attendu lorsque le rendement de doublage est faible, la puissance du complémentaire varie en racine carrée de la puissance de pompe alors que la puissance du rayonnement visible varie linéairement [GR72].

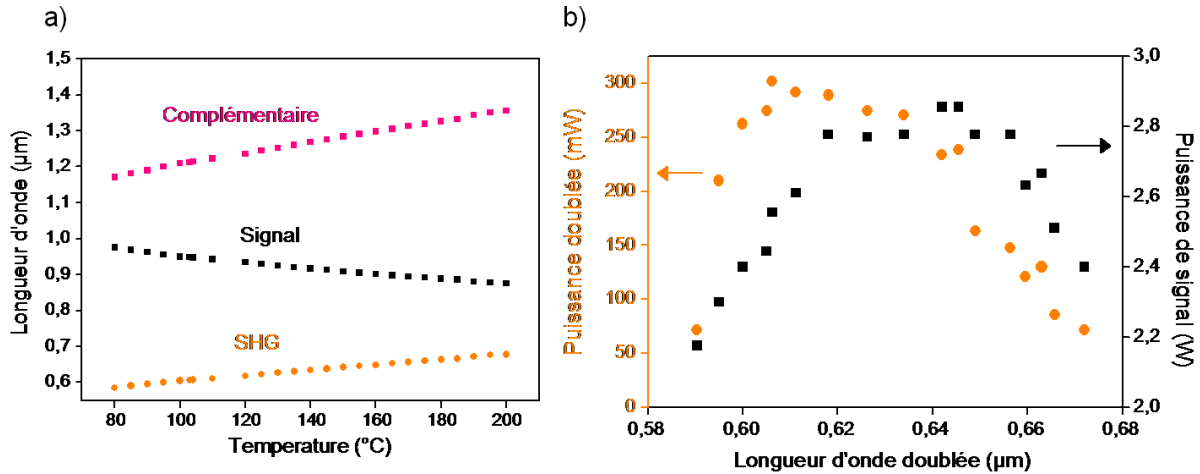


FIGURE 11 – a) Longueurs d’onde produites par le SHG-OPO en variant la température du cristal. b) Puissances produites pour le signal et la longueur d’onde doublée en fonction de la longueur d’onde doublée. La puissance de pompe est de 6,5 W.

L’accordabilité du SHG-OPO est très étendue. On reporte sur la figure 11.a les longueurs d’onde produites en fonction de la température du cristal. La partie b de cette figure représente la variation des puissances du signal et du complémentaire doublé produites en fonction de la longueur d’onde visible. La puissance de pompe est fixée à 6,5 W. Ces courbes ont une forme en cloche : la décroissance vers le rouge est liée aux pertes introduites par le traitement du BBO et celle vers le bleu est causée par l’augmentation de la transmission des miroirs. Malgré tout, il est remarquable d’obtenir une accordabilité d’environ 90 nm dans le visible. En fonctionnement libre, le rayonnement est aisément monomode avec des sauts se produisant typiquement chaque minute. La bande passante des fluctuations de la longueur d’onde de l’émission du SHG-OPO est similaire à celle de l’OPO rouge.

Afin de mieux contrôler la fréquence émise, nous avons légèrement modifié le montage. Nous réutilisons une cavité avec deux miroirs plans et deux concaves. Dans ces conditions, le second waist a une taille relativement importante (de l’ordre du mm), ce qui nous autorise à insérer un étalon sans introduire trop de pertes. La présence de l’étalon limite les sauts de modes et minimise les fluctuations en intensité. Dans cette configuration, nous avons à nouveau asservi la cavité avec un sigmamètre, la fréquence émise est stabilisée à 4 MHz sur 20 minutes. En revanche, la puissance de lumière visible est moins intense (une trentaine de mW à 606 nm), car le mode résonnant dans le cristal doubleur est moins focalisé. Nous espérons augmenter la puissance en utilisant un cristal de BBO plus long ou éventuellement en changeant de cristal non-linéaire. Des essais avec un cristal de  $\text{KNbO}_3$  doivent être réalisés.

## 1.5 Stabilisation en fréquence et mesure du bruit résiduel

Depuis le début du développement des lasers, de nombreux travaux concernent la caractérisation et l'amélioration de leurs propriétés spectrales. Par des méthodes de stabilisation, on cherche à contrôler au cours du temps la valeur de la fréquence émise. Ce champ de recherche recouvre des applications fondamentales dans les domaines de la métrologie et de la spectroscopie à haute résolution. En 2005, le prix Nobel de physique a été attribué pour moitié à J. L. Hall et T. W. Hänsch « for their contributions to the development of laser-based precision spectroscopy, including the optical frequency comb technique ». Le choix du système de stabilisation dépend fortement des bruits de fréquence à corriger et des performances recherchées. Des généralités concernant la stabilisation des sources continues sont données par exemple dans l'article de revue d'Hamilton [Ha89], dans les notes de cours de C. Chardonnet [Ch96] et dans le livre de Riehle [Ri06]. L'efficacité du système d'asservissement dépend :

1. de la référence de fréquence à laquelle on doit se comparer. Il peut s'agir d'une cavité Fabry-Perot, d'un interféromètre de Michelson, de transitions atomiques et moléculaires ou d'un autre laser ;
2. du rapport signal sur bruit du discriminateur de fréquence utilisé pour élaborer le signal de correction. Cet étage peut inclure une détection synchrone ;
3. de la fonction de transfert en boucle ouverte de l'asservissement. On doit aussi adapter l'électronique à l'élément sur lequel on applique la correction (transducteur piezo-électrique, courant de diode, cristal électro-optique).

Afin d'optimiser la boucle d'asservissement, il est nécessaire de caractériser le bruit de fréquence résiduel en mesurant la densité spectrale de bruit,  $S_f(\nu)$ . Cette mesure permet éventuellement d'attribuer une largeur de raie au laser. Par exemple, lorsque les fluctuations à basse fréquence sont réduites par le système d'asservissement et que la densité spectrale  $S_f(\nu)$  est constante (bruit blanc de fréquence), le profil spectral du laser est une courbe lorentzienne dont la largeur est donnée par [ERS82] :  $\Delta\nu = \pi S_f(\nu)$ .

Quelques références traitent de performances de stabilisation de SROPO. En asservissant la longueur de la cavité sur un laser de référence, la largeur de raie d'un SROPO a été réduite à 20 kHz sur 50 ms [SMW02]. La fréquence d'émission de l'OPO peut aussi être asservie sur une transition atomique, comme celle correspondant à la raie D2 du césium [ZLB10]. Par ailleurs, j'ai présenté précédemment quelques exemples de stabilisation de l'OPO que nous avons réalisés avec un sigmamètre. D'après la résolution de cet interféromètre et en analysant les fluctuations du signal d'erreur, nous déduisons que le jitter résiduel de notre source est de l'ordre du MHz. Afin d'en améliorer les performances spectrales, nous avons utilisé la méthode de stabilisation sur un pic de transmission d'une cavité Fabry-Perot. Cette technique est déjà assez ancienne, mais relativement facile à mettre en oeuvre et a été éprouvée aussi bien sur les lasers à co-

lorants [HLH82], à gaz [CAC87] ou solides [VZK90]. Les fluctuations de fréquence du rayonnement visible ont ainsi été réduites à quelques kHz sur la seconde [MMP10].

Nous avons utilisé deux discriminateurs de fréquence : une cavité Fabry-Perot commerciale (ISL=1 GHz, F=100) et une cavité montée au laboratoire (F=3000). Pour cette dernière, les miroirs sont collés sur un barreau d'Invar. Les fluctuations en longueur de cette cavité en fonction de la température sont donc faibles. L'asservissement a été optimisé avec un contrôleur commercial (LB1005 PrecisionPhotonics), une photodiode rapide et des transducteurs piezo-électriques approvisionnés chez Piezomechanik et choisis pour leurs hautes fréquences de résonances (supérieures à 30 kHz d'après nos mesures). Nous présentons sur la figure 12 la mesure de la densité spectrale de bruit déduite du signal d'erreur de l'asservissement du SHG-OPO. La bande passante de l'asservissement (c'est à dire la valeur de la fréquence au gain unité) est évaluée à 10 kHz. Elle est essentiellement limitée par la bande passante de l'amplificateur chargé par le transducteur piezo-électrique. Le gain à basse fréquence est d'environ de 110 dB. Comme représenté sur la figure 12, nous avons aussi mesuré les fluctuations de fréquence du laser de pompe (Verdi 10W). On constate à nouveau que la stabilité de l'émission de l'OPO asservi est bien meilleure que celle de la pompe. A titre d'exemple, on gagne jusqu'à 5 ordres de grandeur sur la densité spectrale de bruit à une fréquence de 1 kHz. On peut aussi déduire de ce graphe une largeur spectrale de la source. Pour cela, on néglige les fluctuations de la cavité de référence. Sur une durée d'une seconde, le niveau de bruit blanc avoisine  $1,6 \cdot 10^7 \text{ Hz}^2/\text{Hz}$ , l'écart type des fluctuations de fréquence du rayonnement orange est donc de 4 kHz. Le plancher bruit atteint est de l'ordre de  $20 \text{ Hz}^2/\text{Hz}$ , attribué aux bruits électroniques de l'amplificateur et de la photodiode de détection. A plus long terme, la cavité de référence subit une dérive d'environ 500 MHz sur une heure. L'OPO suit cette variation sans décrochage avec des fluctuations relatives très faibles, tout au moins aussi faibles que celles caractérisées sur la seconde.

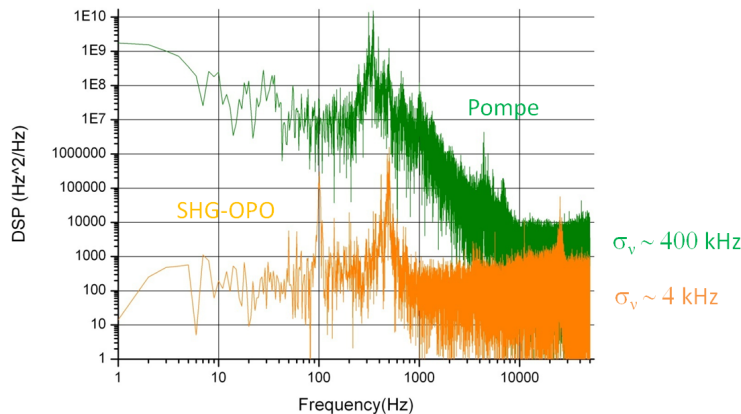


FIGURE 12 – Mesures de la densité spectrale de bruit de la pompe (Verdi 10W) et du SHG-SROPO asservi.

Plusieurs pistes s'offrent à nous pour encore améliorer ces performances. La limitation essentielle de l'asservissement utilisant le signal de transmission d'un Fabry-Perot est liée au temps de réponse de la cavité. La fonction de transfert correspondante est un filtre passe bas du premier ordre, dont la fréquence de coupure est égale à la largeur du pic de transmission, lui-même inversement proportionnel au temps de stockage des photons dans la cavité [HLH82]. Dans les SHG-SROPO, le bruit résiduel mesuré de la source est présent principalement aux basses fréquences, nous ne sommes donc pas limités par ce temps de réponse de la cavité. Par contre, nous pouvons encore optimiser la boucle de réaction à basse fréquence, en utilisant par exemple un système asservi d'ordre  $3/2$ , bien adapté au bruit de notre cavité qui comportent des variations lentes de grande amplitude et des variations rapides de faible amplitude [CAC87].

A plus long terme, une voie prometteuse est l'utilisation d'asservissements de type Pound-Drever-Hall. Cette méthode est désormais très utilisée pour stabiliser une source laser sur une cavité de référence; elle permet d'atteindre les stabilités les plus performantes, de l'ordre du Hz, aussi bien pour les lasers à colorants [YCI99] que pour des diodes lasers [SMH06, CSH04]. Cette technique a été initialement utilisée par Pound dans le domaine des micro-ondes, et elle a été appliquée par Drever et Hall sur les lasers [DHK83]. Ces systèmes sophistiqués de stabilisation ont bénéficié des exigences des recherches effectuées dans le domaine de la détection d'ondes de gravitation [BFM96].

L'asservissement de type PDH repose sur l'enregistrement du signal réfléchi, par un laser modulé, qui a été envoyé sur une cavité Fabry-Perot de haute finesse. Le signal recueilli a une forme dispersive en fonction de la fréquence (cf. FIG. 13.a); il présente à la fois une forte variation autour de l'origine (donc une forte discrimination en fréquence) et il tend assez lentement vers zéro plus loin (ce qui permet d'avoir une bonne plage d'accrochage). On peut aussi, en utilisant 2 fréquences de modulations différentes, asservir deux lasers sur la même cavité. D'autre part, l'asservissement est relativement insensible aux fluctuations d'intensité du laser. Enfin, le signal d'erreur contient aussi une information sur la phase de l'onde laser, même pour des temps inférieurs au temps de stockage de la lumière dans la cavité. Il y a donc moyen d'optimiser une boucle d'asservissement dont la bande passante n'est pas limitée par la largeur du Fabry-Perot. Nous débutons des expériences pour mettre au point ce type d'asservissement avec une cavité de finesse 3000 et un modulateur de phase fonctionnant à 25 MHz (cf. FIG. 13).

Afin d'améliorer encore les performances spectrales de la source, les qualités de la boucle de rétroaction de l'électronique de l'asservissement ne suffisent pas à elles seules. Comme décrit dans la référence [SHH88], il faut prendre en compte des effets physiques et des contraintes technologiques en vue d'asservir un laser sous le Hz (isolations mécaniques, stabilisation en température de l'environnement, propriétés thermo-mécaniques de la cavité de référence, optimisation des composants électroniques...).



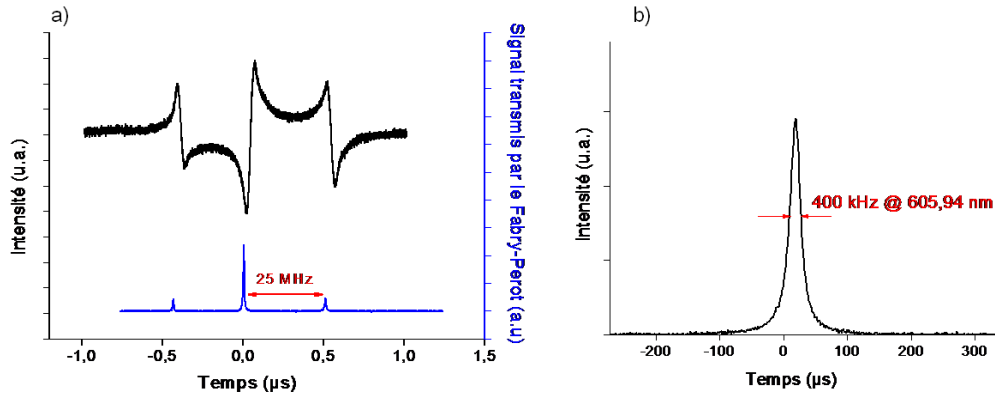


FIGURE 13 – a) Signal transmis à travers la cavité Fabry-Perot (en bleu) et signal d’erreur de type PDH (en noir). b) Zoom de la transmission.

## 1.6 Effets Raman

Lorsque nous avons débuté la réalisation du SHG-OPO, nous avons d’abord construit un OPO ayant une forte puissance intracavité nécessaire pour un doublage efficace. Cet OPO, basé sur un cristal de ppSLT comportait 4 miroirs (2 concaves et 2 plans), tous ayant une forte réflectivité, supérieure à 99,8% pour des longueurs d’onde allant de 1,2 à 1,4  $\mu\text{m}$ . Dans une telle cavité, le seuil d’oscillation est très bas, de 500 mW. Ainsi, la puissance délivrée par le laser de pompe (Verdi 10W) nous autorise un pompage d’environ 15 fois au dessus du seuil. Lorsque l’oscillateur infrarouge fonctionne, nous observons aussi un rayonnement visible. Cette lumière résulte d’un phénomène de conversion non-linéaire résiduel qui est couramment observé dans les systèmes paramétriques résonnants basés sur des cristaux ayant un fort coefficient non linéaire. Les ondes intenses présentes dans la cavité suffisent à générer une réponse peu intense du milieu, même sans accord de phase. Cette lumière apparaît dès le seuil franchi et est très utile pour les réglages. Par contre, de manière plus surprenante, lorsque nous avons envoyé cette lumière visible dans un spectromètre de basse résolution, nous avons mesuré une dizaine de longueurs d’onde comme indiquée sur la figure 14.

Rapidement, nous avons attribué ce phénomène d’émissions parasites à la diffusion Raman stimulée [MRM09], déjà observée dans les cristaux de ppLN [OZ06, HS07, VPP09]. Dans ces références aussi, la puissance de pompe utilisée excède largement le seuil, jusque 16 fois. Afin de comprendre plus en détail ce mécanisme dans le ppSLT, nous avons enregistré le spectre de sortie de l’OPO dans l’infrarouge (cf. FIG. 14). Les différentes raies Raman apparaissent sur le spectre du complémentaire, en nombre de plus en plus élevé au fur à mesure que la puissance de pompe augmente. Les raies sont décalées les unes par rapport aux autres d’environ  $200\text{ cm}^{-1}$ ; cette valeur est compatible avec les modes de phonons des cristaux de  $\text{LiTaO}_3$  [PCA76]. L’apparition de raies successives en fonction de la puissance de pompe est due à un effet Raman en cascade. A

partir de 3 W de pompe, on observe aussi des raies anti-Stokes, plus faibles en intensité.

Nous avons aussi vérifié que le gain Raman stimulé donne naissance à une oscillation laser. Expérimentalement, le seuil est évalué à 700 mW de pompe. Dans ces conditions et d'après la mesure de la transmission du miroir de couplage de la cavité de  $5 \times 10^{-5}$ , ce seuil Raman laser est franchi pour 30 W de puissance intracavité de complémentaire. L'intensité dans le cristal s'élève à  $0,7 \text{ MW/cm}^2$ . Sachant que le gain Raman du  $\text{LiTaO}_3$  est de  $4,4 \text{ cm/GW}$  [Bo03], la lumière infrarouge dans le cristal engendre un gain par tour de 0,9%, compatible avec les pertes de la cavité entre 1,2 et  $1,4 \mu\text{m}$ . Nous avons aussi interprété la position des raies produites dans le visible.

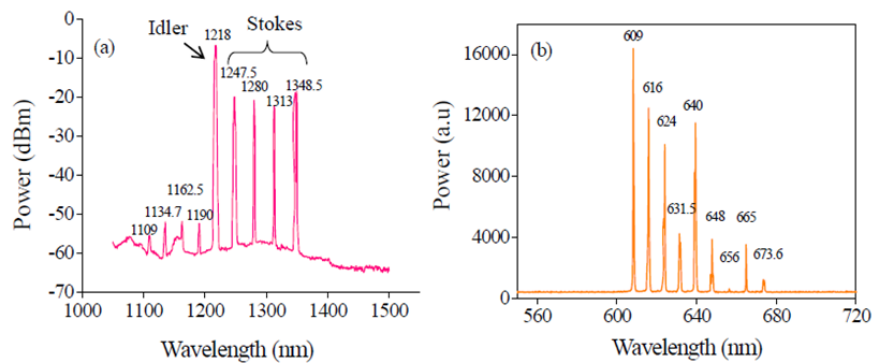


FIGURE 14 – Spectre de sortie de l'OPO réalisé pour 5 W de pompe, soit une puissance dépassant de 10 fois le seuil. a) Partie infrarouge du spectre enregistré avec une résolution de 1 nm. b) Partie visible du spectre enregistré avec une résolution de 0,3 nm.

Ensuite, nous nous sommes attachés à rendre l'émission monomode en supprimant l'effet laser Raman. Nous avons changé le miroir de couplage et doublé les pertes par tour entre 1,2 et  $1,4 \mu\text{m}$ . En conséquence, le seuil de l'OPO est doublé tout comme le seuil d'oscillation Raman. La transmission du miroir est aussi un peu plus forte, de  $8 \times 10^{-4}$ , l'onde stockée dans la cavité est moins intense. Au final, nous avons éliminé les émissions parasites dues à l'effet Raman dans le cristal de ppSLT, même pour une puissance de pompe de 7,5 W.

## 1.7 Quelques effets indésirables dans les SROPO continus

Même si nous n'avons pas encore toutes les réponses aux problèmes rencontrés, je décris ici rapidement quelques difficultés qu'il nous reste à résoudre dans le domaine des OPO continus. Comme nous l'avons vu, ces sources sont de plus en plus fiables et délivrent plusieurs centaines de mW d'un rayonnement dont les variations relatives de fréquence peuvent être stabilisées avec un bruit résiduel très faible. Cependant, il est encore difficile de contrôler parfaitement le mode émis. Dans les conditions normales de fonctionnement, c'est celui où le gain paramétrique est maximum. L'ajout d'un étalon

permet de moduler le gain et de changer la fréquence d'émission (cf. FIG. 15.a). Malheureusement, comme nous l'observons aussi bien sur notre expérience que sur d'autres montages publiés, la réalité est plus compliquée.

Tout d'abord, comme je l'ai déjà expliqué, les effets thermiques dans les OPO rendent la conversion paramétrique moins efficace. Le gradient de température présent dans le cristal en raison de l'absorption modifie son indice et change la propagation des faisceaux. Malgré tout, il s'établit un régime stationnaire et l'intensité est relativement stable (de l'ordre du % sur quelques minutes). Par contre, les effets thermiques modifient aussi les propriétés spectrales de l'OPO. La bande de gain paramétrique est élargie et la position de son maximum est décalée en longueur d'onde [MRM09, HS06a, HS07]. D'autre part, lorsque la puissance de pompe augmente, comme prévu, l'émission du SROPO devient multimode pour une valeur excédant 4 à 5 fois le seuil. De façon plus surprenante, le nombre de modes émis peut être assez important (entre 5 et 10) et la distance les séparant bien supérieure à l'ISL de la cavité (environ 100 fois) [VPP09, HS06a, ZLB10]. Des simulations numériques permettent de montrer que les effets thermiques contribuent fortement à ce caractère multimode des SROPO à forte puissance de pompe [MBK02]. Une autre conséquence des effets thermiques est le phénomène de « Thermal self-locking », observé aussi bien dans les SROPO [VPP09] que les DROPO [HB97]. Sur nos montages, nous avons constaté cet effet lorsqu'un étalon était inséré dans la cavité. Lorsque la fréquence du mode dérive, il y a une diminution de la puissance lumineuse circulant dans la cavité. La température du cristal baisse de telle sorte que le maximum de gain se rapproche du mode émis. Dans ces conditions, même en fonctionnement libre de la cavité, l'oscillation est monomode sur plusieurs heures. Bien sûr, il s'agit d'un phénomène de stabilisation passif, la longueur d'onde change continûment dans le temps.

Par ailleurs, d'autres effets compliquent l'interprétation du comportement spectral des OPO. On se rend compte expérimentalement [VPP09, St07], que le profil « apparent » de la bande de gain paramétrique est irrégulièrement modulé (cf. FIG. 15.b). L'origine de ces modulations est mal connue. Elles peuvent être attribuées à des inhomogénéités dans le cristal, à des effets d'étalons parasites, à nouveau à des effets thermiques ou à des effets photoréfractifs lorsque les puissances mises en jeu sont importantes. L'existence de ces modulations rend parfois difficile l'accord précis de la fréquence de l'OPO, voir impossible par endroit.

Ainsi, ces effets parasites rendent encore délicate l'utilisation des OPO continus pour certaines applications. Par exemple, dans la référence [ZLB10], les auteurs présentent un OPO pompé dans le vert avec une des fréquences émises asservie sur la raie D2 du césium. De façon assez surprenante, la longueur d'onde ne peut pas être stabilisée durant plus de 9 minutes. Sur d'autres montages, c'est la plage de balayage qui est assez réduite, limitée par exemple à 2 GHz pour une source émettant à 1163 nm et consacrée au refroidissement de l'osmium négatif [GLL10]. Dans nos expériences, la

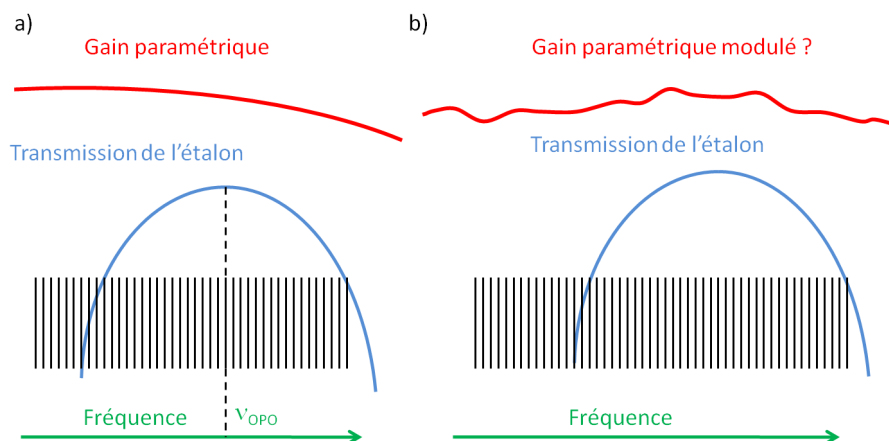


FIGURE 15 – Principe de la sélection de mode dans un SROPO en présence d'un étalon. a) Situation idéale. b) Représentation plus proche des observations expérimentales où la bande de gain paramétrique est modulée de façon aléatoire.

difficulté principale que nous rencontrons est la présence de zones où il est impossible de faire fonctionner l'OPO et de choisir a priori la longueur d'onde à laquelle on veut se placer. Il nous est aussi difficile de changer la fréquence d'émission par sauts de modes consécutifs en tournant l'étalon.

Malgré tout, ces difficultés semblent avoir été résolues sur certaines expériences. Par exemple, Henderson et Stafford [HS06b] ont développé un OPO pompé par un laser à fibre infrarouge. Les effets photoréfractifs sont faibles à ces longueurs d'onde. Ils ont aussi élaboré des cristaux de ppLN de 80 mm de long dans lesquels la conversion paramétrique est très efficace. Les effets thermiques sont alors évités car il n'y a pas de stockage excessif de lumière dans la cavité. Ces auteurs présentent des balayages enregistrés sur  $1 \text{ cm}^{-1}$  sans saut de mode. La stabilité à court terme de la source est aussi très bonne.

Pour notre part, nous envisageons de réaliser deux nouveaux montages où nous espérons mieux contrôler l'émission de l'OPO. Il s'agit d'un OPO pompé dans le vert en régime Q-CW, où les puissances moyennes sont faibles. Nous utiliserons un cristal de ppKTP réputé plus robuste aux effets photoréfractifs survenant dans le visible. Nous développerons aussi en collaboration avec l'ONERA un OPO continu doublement résonant à cavité duales (cf. partie 3.2). Le fonctionnement doublement résonant permettra de limiter les puissances nécessaires et le laser de pompe fonctionnera dans l'IR.

## 2 Verrouillage en phase des modes d'un oscillateur paramétrique optique

J'aborde maintenant un autre volet de mon travail de recherche sur les OPO. Contrairement aux travaux décrits précédemment, la motivation n'était pas le développement de sources spécifiques pour d'autres expériences, mais plutôt d'explorer un régime nouveau de fonctionnement des OPO. C'est ainsi qu'en collaboration avec l'ONERA, nous avons étudié la faisabilité du verrouillage de phase dans les oscillateurs paramétriques. En effet, les pionniers de la physique des lasers ont montré dans les années 1960 qu'un laser oscillant sur  $N$  modes longitudinaux était capable d'émettre des impulsions de durée égale au temps que met la lumière pour faire un tour dans la cavité divisé par  $N$ , à condition que tous ces modes oscillent en phase. Ce fonctionnement en « modes verrouillés » est à l'origine du développement des lasers picosecondes puis femtosecondes. Un tel régime de fonctionnement n'avait jamais été exploré expérimentalement dans un OPO. Ce travail est décrit de manière exhaustive dans les thèses de N. Forget [Fo05] et J.-M. Melkonian [Me07] qui ont réalisé les expériences au LAC.

### 2.1 Problématique

Les sources picosecondes et femtosecondes ont de nombreuses applications. Les lasers solides bloqués en mode les plus courants, réalisés dans des matériaux disposant d'une bande de gain suffisamment large, sont le Ti :Sa pour la gamme 700-850 nm, les Yb :verres pour le domaine 980-1050 nm et le Cr :ZnSe pour la région 2,1 à 2,3  $\mu\text{m}$ . Pour étendre ces gammes spectrales, on pompe des OPO de manière synchrone. La longueur de cavité de l'OPO est ajustée de telle sorte que le signal fait un aller-retour pendant le temps qui sépare deux impulsions de pompe, permettant ainsi la mise en place de l'oscillation. Le premier OPO pompé de manière synchrone a fonctionné en régime picoseconde [PSU88], suivi peu après par un OPO pompé dans le régime femtoseconde [WET90]. Pour étendre l'accordabilité dans le visible des OPO femtosecondes, on peut employer un laser Ti :Sa femtoseconde doublé comme pompe bleue [GCD95].

Comme suggéré par nos collaborateurs de l'ONERA et en particulier N. Forget, nous avons exploré la possibilité de générer directement des impulsions courtes dans les OPOs. En effet, au voisinage de la dégénérescence, la bande passante du gain du cristal non-linéaire devient très large, permettant en principe de faire osciller un grand nombre de modes longitudinaux. Malgré tout, des travaux théoriques ont montré [BKP74] que cette méthode n'était pas envisageable pour produire des impulsions très courtes, car il n'y a pas de stockage d'énergie dans l'OPO. Comme aucun travail expérimental n'avait été réalisé, ni sur le blocage de modes, ni sur la génération d'impulsions courtes, nous avons décidé d'entreprendre quelques études sur ce sujet.

## 2.2 Eléments théoriques

Afin d'évaluer la durée d'impulsion attendue après verrouillage de phase, nous avons montré que l'on pouvait transposer les modèles des lasers aux OPOs. Ceci provient du fait que le gain en intensité d'un amplificateur paramétrique prend une forme exponentielle dont l'argument varie de façon quadratique avec la fréquence (cf. l'équation 7). Cette forme est exactement identique à celle d'un amplificateur laser dans le régime non saturé et en négligeant le tirage de fréquence. On peut donc appliquer le modèle de Kuizenga et Siegman [SK72] qui repose sur le calcul analytique de l'évolution du champ pour chaque tour de cavité. Le détail des calculs des durées d'impulsions pour différentes configurations se trouve dans l'annexe D de la thèse de J.-M. Melkonian [Me07].

Pour un SROPO dont les longueurs d'onde produites sont éloignées de la dégénérescence et dans un régime de pompage faible, la situation est relativement simple car le modèle de Kuizenga et Siegman est immédiatement transposable. La forme de l'impulsion de l'onde signal est décrite par une enveloppe gaussienne lentement variable, de largeur  $\tau$ . On inclut dans la cavité un amplificateur, dont le gain petit signal est donné par  $G = 1 + g^2 L^2$ . Le modulateur d'amplitude, dont le rôle est d'activer le blocage de modes, possède une transmission en intensité donnée par  $T = 1 - \mu \sin^2 \Omega t / 2$  où  $\mu$  est la profondeur de modulation,  $\Omega = 2\pi f_{cav}$  sa pulsation de modulation égale à  $2\pi$  près à l'intervalle spectral libre de la cavité. De manière classique, on suppose la modulation synchrone avec l'impulsion supposée aussi assez courte, ce qui autorise à exprimer la transmission par  $T \approx \exp(-\mu \frac{\Omega^2}{4} t^2)$ . La bande de gain est  $\Delta\omega = \frac{2\sqrt{3}}{L(v_{g,s}^{-1} - v_{g,c}^{-1})}$  et les pertes sont notées  $p$ , sans dépendance en fréquence. Le régime stationnaire d'impulsions courtes est obtenu lorsque le champ revient identique à lui-même après un tour, donnant une condition à la fois sur l'amplitude, qui est la condition habituelle telle que le gain soit égale aux pertes, et la durée  $\tau$  de l'impulsion, qui est égale à :

$$\tau_{sta} \approx \left(\frac{g^2 L^2}{\mu}\right)^{1/4} \frac{2}{\sqrt{\Omega \Delta\omega}} \quad (13)$$

On peut exprimer cette durée en fonction du nombre de modes dans la bande de gain,  $N = 2\Delta\omega/\Omega$  :

$$\tau_{sta} \approx \frac{2\sqrt{2}}{\Omega\sqrt{N}} \left(\frac{g^2 L^2}{\mu}\right)^{1/4} \quad (14)$$

Ainsi, comme dans le cas des lasers à gain homogène et verrouillés activement, la durée d'impulsion résulte d'une compétition entre le gain et la modulation, et varie comme l'inverse de la racine carrée du nombre de modes. La bande de gain n'est pas totalement utilisée. On montre aussi que le temps de construction du régime stationnaire est proportionnel au temps d'aller-retour des photons dans la cavité multiplié par le nombre de modes à verrouiller en phase. Notons que ce modèle est aussi valable en gain fort.

Pour aller plus loin, on utilise le modèle de Haus [Ha75], valable en gain faible, qui permet de prendre en compte différents effets dispersifs qui conduisent à un allongement de la durée d'impulsion :

1. on prend en compte la correction à l'ordre 2 de la forme de la bande de gain paramétrique (cf. le facteur  $D$  de l'équation 6) ;
2. la dispersion associée à chaque élément de la cavité. La dispersion totale est proportionnelle à  $k(\omega)L$ , dont on développe l'expression à l'ordre 1 et 2 autour de  $(\omega_s - \omega_{s,0})$ . Dans le domaine des impulsions courtes, le terme à l'ordre 1 est le délai de groupe et le terme à l'ordre 2 traduit l'influence de la dispersion de vitesse de groupe.

Ce modèle tient compte aussi d'un éventuel décalage entre la fréquence de modulation et les fréquences de résonance des modes de la cavité. La méthode utilisée consiste encore à décrire l'évolution du champ électrique sur un tour, et d'effectuer un calcul perturbatif en supposant que l'impulsion ne subit que des changements infinitésimaux à chaque tour. L'effet de la dispersion est d'introduire un terme correctif qui allonge la durée de  $(\frac{48}{\mu g^2 L^2} \frac{\Delta\omega^2}{\Omega^2} D^2)^{1/4}$  où  $D$  est la dispersion totale dans la cavité.

Afin de fixer les ordres de grandeur, on se propose de donner quelques chiffres pour un SROPO comme celui utilisé sur notre expérience, fonctionnant avec un cristal de ppLN :MgO. La longueur du cristal est de 30 mm, il est pompé à 532 nm et chauffé à 93°C afin de produire un signal résonnant à 975 nm et un complémentaire à 1084 nm. Le modulateur est un cristal de LiNbO<sub>3</sub>, long de 60 mm, modulé à 122 MHz avec un taux de modulation voisin de 0,5. Les pertes de la cavité sont de 3,6 %, ainsi  $p=0,036$ . La cavité a une longueur de 2,5 m, la durée de vie de photons est donc de 0,2  $\mu$ s. Dans ces conditions, on s'attend à des durées d'impulsions (LTMH) sans dispersion de 36 ps et de 46 ps avec. Le temps de construction vaut 480  $\mu$ s. Les pertes sont faibles tout comme le gain, qui est alors fixé à la valeur de condition d'oscillation  $g^2 l^2 = p$ . On remarque par ailleurs qu'il n'est pas nécessaire d'être exactement à la dégénérescence pour obtenir des impulsions courtes, de l'ordre de 40 ps. L'avantage de choisir des longueurs d'onde ainsi éloignées de la dégénérescence est d'obtenir plus facilement un comportement simplement résonnant.

Le formalisme décrit jusqu'à présent, similaire à celui des lasers, est valable pour les SROPO où une seule onde résonne dans la cavité. Il est cependant intéressant, pour la description de nos expériences, d'évaluer la durée des impulsions pour un DROPO. Dans le DROPO non dégénéré, il y a deux impulsions distinctes qui voyagent dans la cavité. Comme la dispersion n'est pas compensée, les deux ondes voyagent à des vitesses différentes, elles se décalent temporellement au cours de la propagation. Ainsi, elles ne voient pas la même amplitude de modulation après quelques tours. Dans le formalisme de Haus, on établit que la durée d'impulsion s'écrit :

$$\tau = \frac{2}{\sqrt{\Omega} \Delta\omega_{DRO}} \left( \frac{g^2 L^2}{\mu} \right)^{1/4} \quad (15)$$

L'expression est similaire à celle du SROPO, mais la bande passante dépend aussi des pertes et est maintenant donnée par :

$$\Delta\omega_{DRO} = \frac{2p}{\frac{L}{v_{g,s}} - \frac{L}{v_{g,c}}} \quad (16)$$

Au final, la durée des impulsions dépend plus fortement des différences de vitesse de groupe, et donc de la dispersion. D'après les chiffres donnés dans l'application numérique précédente : les impulsions du DROPO ( $\lambda_s=1050$  nm) sont de l'ordre de 100 ps alors qu'elles n'étaient que de 46 ps pour un SROPO ( $\lambda_s=975$  nm).

Dans le domaine fréquentiel, on peut aussi interpréter la durée plus courte des impulsions du DROPO, limitées par la dispersion. En dehors de la dégénérescence, différents modes fonctionnent simultanément sous forme de « clusters » (cf. FIG. 4). Les zones de fonctionnement dépendent du recouvrement entre les peignes signal et complémentaire. Ce recouvrement se traduit par une fonction de transmission  $T_{Cluster}$  qui dépend de la longueur et de la finesse des cavités. Ainsi, le nombre de modes qui fonctionnent ensemble est réduit. La bande de gain effective est égale au produit de  $\Delta\omega$  par  $T_{Cluster}$ . Pour notre expérience, la largeur typique d'un cluster varie de 0,05 à 0,6 nm, ce qui correspond à un nombre de modes signal allant de 100 à 1400 modes. Ce rétrécissement de la courbe de gain, donc du nombre de modes disponibles, explique l'allongement prévu de la durée d'impulsion dans le cas du DROPO.

### 2.3 DROPO dans le régime quasi-continu

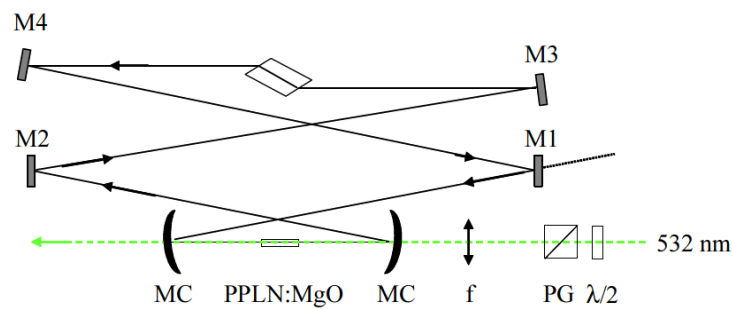


FIGURE 16 – DROPO avec 6 miroirs et le modulateur acousto-optique.

Afin de compenser les pertes supplémentaires causées par la présence du modulateur dans la cavité et l'éventuelle augmentation de seuil qui en découle, nous avons débuté les expériences sur le blocage de modes avec un pompage quasi-continu et une cavité doublement résonante [FBD06]. La cavité est représentée sur la figure 16. Avant d'appliquer la modulation, on utilise une cavité semblable à celles utilisées pour les OPO continus visibles. Les points nouveaux à noter sont :



1. l'insertion d'un modulateur acousto-optique dans le bras collimaté de la cavité. Ce modulateur est constitué d'un cristal de 60 mm de long dont les faces d'entrée et sortie sont taillées à l'angle de Brewster. On applique la modulation à une fréquence d'environ 60 MHz et une puissance de 2 W. Comme on utilise le laser de pompe quasi-continu, le signal-radiofréquence est découpé et n'est actif que pendant l'impulsion de l'OPO ce qui évite d'avoir à refroidir le cristal ;
2. afin d'adapter les modes longitudinaux à cette fréquence de modulation, il faut construire une cavité d'environ 2,5 m. Pour replier la cavité, nous avons choisi un montage comprenant 6 miroirs dont deux sphériques avec un rayon de courbure 250 mm ;
3. la réflectivité des miroirs assure un comportement doublement résonnant de l'oscillation. Ils présentent une réflectivité large bande, supérieure à 99.7 % autour de  $1,064 \mu\text{m}$  ;
4. l'amplification paramétrique est assurée par un cristal de ppLN long de 30 mm, dopé à 5% en MgO. Le réseau a une période égale à  $6,92 \mu\text{m}$  et les faces du cristal sont traitées antireflet de 950 à 1150 nm. Près de la dégénérescence, atteinte pour une température de  $60^\circ\text{C}$ , les longueurs d'onde émises sont très sensibles à la température. Ainsi, afin de contrôler précisément la température du cristal, nous avons utilisé des fours spécifiques, comprenant des éléments Peltier et un contrôleur, assurant ainsi une stabilisation à mieux que  $0,01^\circ\text{C}$  près.

Le seuil d'oscillation de l'OPO est de 1,6 W. Nous choisissons une température du cristal afin de produire des émissions autour de 1050 nm et 1080 nm, ce qui permet éventuellement de séparer ces longueurs d'ondes avec un prisme. Les évolutions temporelles de la pompe incidente, de la pompe déplétée et du signal sont représentées sur la figure 3.

Lorsque le modulateur acousto-optique est allumé et ajusté pour s'adapter à la période de la cavité (59,518 MHz), l'OPO fonctionne en émettant un train d'impulsions. Elles sont analysées avec un système de détection rapide, constitué d'un oscilloscope de bande passante 2,5 GHz et d'une photodiode de temps de montée de 50 ps. Leur largeur est d'environ 700 ps et leur taux de répétition est de  $8,4 \text{ ns} \pm 50 \text{ ps}$ , compatible avec l'intervalle spectral libre de la cavité. De même, comme prévu, la puissance crête des impulsions ne dépasse pas la puissance crête du régime continu. Par contre, la durée de 700 ps est plus grande que celle estimée théoriquement, évaluée à une centaine de picosecondes dans nos conditions. Nous avons aussi enregistré l'évolution du train d'impulsions en fonction du temps (cf. FIG. 17). De manière assez inattendue, leur durée s'allonge au cours du temps (depuis 600 ps jusqu'à plusieurs ns) et on observe conjointement l'apparition d'un fond continu d'amplitude croissante. Dans cette expérience, le régime stationnaire n'est pas atteint. On vérifie aussi expérimentalement que ce comportement est indépendant de la puissance de pompe ; la durée d'impulsion croît linéairement avec le temps. Malgré tout, le train d'impulsions est clairement attribuable au phénomène de

blocage de modes dans l'OPO.

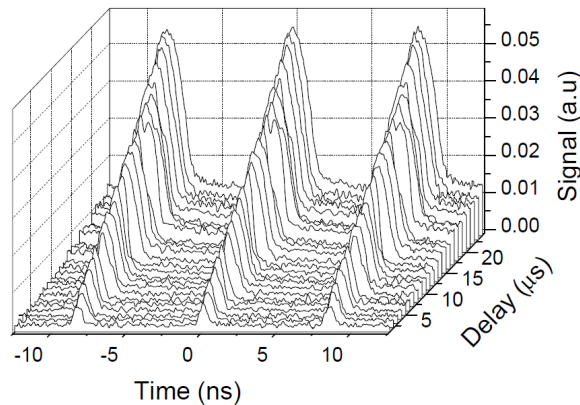


FIGURE 17 – Evolution temporelle des impulsions signal et complémentaire avec un pompage *Q-CW*. On observe un élargissement des impulsions au cours du temps ainsi qu'une montée du fond continu.

Nous avons plusieurs hypothèses pour expliquer l'allongement des impulsions observé expérimentalement. La durée de pompage est finie, le régime stationnaire d'établissement du train d'impulsions est-il atteint dans ces conditions ? Par ailleurs, nous avons aussi mesuré des dérives de fréquence du laser de pompe qui apparaissent à chaque tir et qui résultent d'effets thermiques. Nous avons un temps incriminé ces dérives pour expliquer l'évolution des durées des ondes générées par l'OPO.

Nous avons donc poursuivi les expériences sur le blocage de modes actif en utilisant un laser de pompe continu commercial (Verdi 10W, Coherent) [MFB07]. Je ne décris pas ici les expériences réalisées en DROPO. Tout comme en régime quasi-continu, on observe toujours des impulsions anormalement longues, d'environ 1,2 ns.

## 2.4 SROPO dans le régime continu

Lorsque que nous avons réalisé les expériences avec un DROPO en continu, nous observions assez régulièrement des sauts de modes, espacés typiquement de  $150 \mu\text{s}$ . Ces sauts résultent de la condition de résonance plus stricte dans les cavités doublement résonnantes. Nous avons donc construit une cavité simplement résonnante, susceptible d'être beaucoup plus stable. Cette configuration présente aussi l'avantage d'être formellement équivalente à un laser, où une seule onde voyage dans la cavité. Le SROPO est réalisé avec 4 miroirs de réflectivité supérieure à 99,8 % entre 900 et 980 nm et une transmission supérieure à 99 % entre 1160 et 1300 nm. Afin de se placer dans le régime simplement résonant, le cristal est chauffé à  $93^\circ\text{C}$  ; l'OPO produit un signal à 973 nm et un complémentaire à 1174 nm. Le seuil est de 1,1 W, compatible avec un seuil théorique de 0,7 W calculé pour des pertes par tour de cavité de 0,5 %. Le temps typique entre

deux sauts de modes est maintenant de l'ordre de la seconde. Lorsque la modulation est allumée et accordée, on retrouve le train d'impulsions. On représente ce train sur la figure 18 avec deux échelles de temps différentes. Les impulsions sont normalisées, faisant apparaître un fond d'environ 7 %.

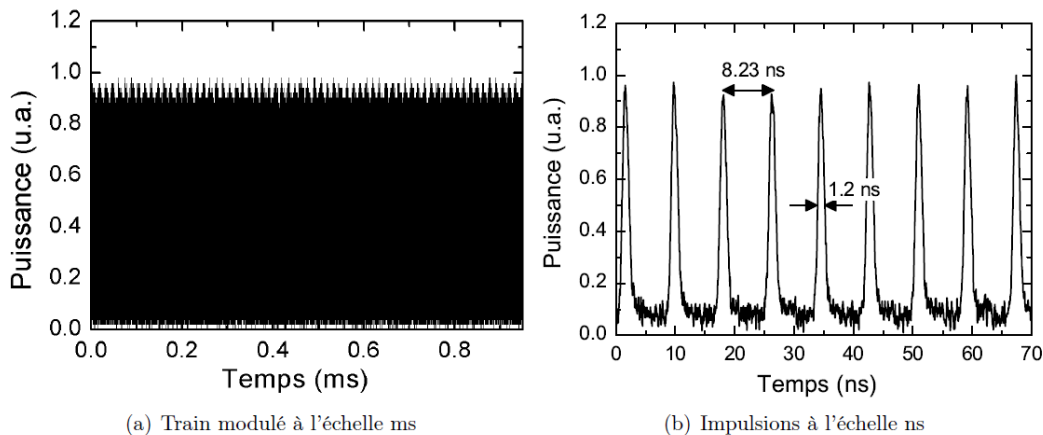


FIGURE 18 – Puissance du signal à 975 nm émis par le SROPO continu, modulé avec un taux de 0,4 et pompé 1,4 fois au dessus du seuil.

L'évolution de la durée d'impulsions est représentée sur la figure 19. Le régime stationnaire est atteint après 100  $\mu$ s où la largeur des impulsions est toujours de l'ordre de la ns. Le comportement est très similaire à celui du DROPO. Nous avons vérifié l'influence sur la durée des impulsions du rapport entre le gain et le taux de modulation. Tout comme pour les lasers à verrouillage de phase, cette durée est proportionnelle à  $g^2 L^2 / \mu$ . L'augmentation du taux de modulation permet de transférer de l'énergie entre les modes longitudinaux voisins, on augmente le nombre de modes verrouillés ce qui conduit à une diminution de la durée d'impulsions. Nous les avons ainsi raccourcies de 1,2 ns à 800 ps en augmentant la profondeur de modulation, jusqu'à une valeur où l'OPO arrête d'osciller. Dans le cas contraire, une augmentation du gain à pertes fixes permet à plus de modes d'osciller. Si le taux de modulation est inchangé, ces nouveaux modes oscillants ne sont pas verrouillés, ce qui conduit à une augmentation de la durée d'impulsion.

## 2.5 Modélisation numérique de l'effet de saturation

Durant l'oscillation paramétrique, comme nous l'avons déjà mentionné, la croissance du signal s'accompagne de la déplétion de la pompe, c'est-à-dire d'un effet de saturation du gain. Nous devons à J.-M. Melkonian la conception d'une simulation numérique faisant clairement le lien entre cette saturation et l'allongement de la durée des impulsions [Me07]. J'en donne ici une brève description et commente le résultat obtenu. L'idée est de suivre l'évolution d'une impulsion unique au travers des différents éléments de

la cavité optique, tout comme dans le modèle de Kuizenga et Siegman. L'impulsion est décrite par l'enveloppe du champ électrique autour d'une porteuse optique en résonance avec la cavité. Sur un tour, on prend en compte la modulation, les pertes et la dispersion comme dans les modèles précédents. Par contre, on résout les équations non-linéaires couplées de l'amplification paramétrique ce qui permet éventuellement de prendre en compte la diminution du champ de pompe. Dans le cristal, les équations couplées sont résolues en fonction du temps alors que la dispersion, incluant le désaccord de phase, est résolue dans l'espace de Fourier. On segmente ainsi la longueur du cristal en une vingtaine d'éléments pour calculer successivement l'effet de l'amplification et de la dispersion (méthode « split-step »). A chaque tour de cavité, la pompe est initialisée à son niveau de départ. Enfin, les champs signal et complémentaire sont initialisés par un bruit temporellement plat.

Les simulations permettent de rendre compte convenablement de l'évolution des durées d'impulsion en fonction de la puissance de pompage et du taux de modulation et ainsi d'appréhender la dynamique du blocage de modes. Nous représentons sur la figure 19 les résultats de cette modélisation comparée à l'expérience. La simulation est réalisée

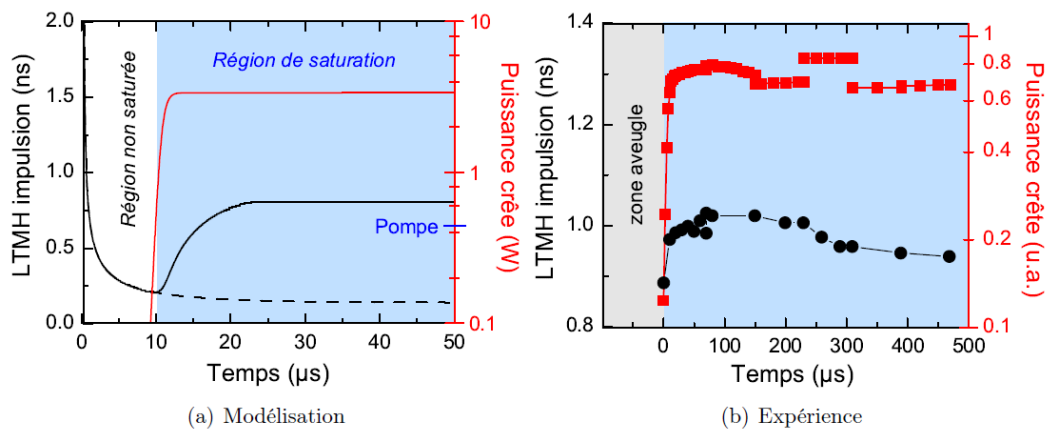


FIGURE 19 – Modélisation du SROPO à modes verrouillés en phase et comparaison avec l'expérience [Me07].

pour le SROPO fonctionnant à 975 nm, pompé 1,4 fois au dessus du seuil, avec des pertes de 5 %, un taux de modulation de 0,4 et une cavité ayant un temps d'aller-retour de 8,23 ns. On calcule sur ces graphes à la fois les durées d'impulsions et leur puissance crête. En courbe pointillée, on reporte aussi la variation de la durée d'impulsion issue du modèle de Kuizenga et Siegman. Celle-ci est ajustée aux temps courts pour qu'elle se superpose à la simulation. Sur la partie droite de la figure, on reporte les points expérimentaux.

De ces simulations, nous distinguons deux régimes. Au démarrage, en régime non saturé, la durée d'impulsion suit exactement le modèle analytique, on observe un temps de construction d'environ 20  $\mu$ s. Lorsque la puissance crête approche celle de la pompe

(sa valeur est reportée sur le graphe de modélisation), celle-ci se dépeuple, on atteint la saturation. C'est à partir de ce moment-là que les impulsions s'étirent et que l'on ne suit plus la loi décrite par le modèle analytique. Lorsque le gain est complètement saturé, le régime stationnaire est atteint pour la puissance. Le modèle est compatible avec une durée d'impulsion finale de l'ordre de la ns.

## 2.6 Conclusion et perspectives

Nous avons donc montré au cours de ces expériences la faisabilité du blocage actif de modes dans les OPO, qu'ils soient simplement ou doublement résonnants. Signalons que ce type de blocage de modes a récemment été étendu aux OPO fibrés [YZL09]. Au cours de nos travaux, nous avons constaté que la largeur des impulsions dépendait de la saturation du gain. Hors résonance, les susceptibilités non linéaires d'ordre 2 sont indépendantes de la fréquence et la réponse des polarisations suit instantanément le champ électrique. Les photons ne sont pas absorbés dans un niveau excité, il n'y a pas de stockage d'énergie. Cette situation est différente dans les lasers, où le temps de réponse du milieu amplificateur, appelé souvent « temps de récupération du système », est par exemple de l'ordre de la  $\mu\text{s}$  dans les lasers solides.

Depuis, des travaux théoriques ont été menés à l'ONERA afin de trouver des solutions pour réaliser des impulsions courtes par blocage de modes [KMG08a,KMG08b]. Dans ces deux références, les idées exposées consistent à réaliser un blocage de modes passif (avec absorbant saturable ou par effet Kerr) et surtout à contrôler les vitesses de groupe de la pompe et des ondes générées. Lorsque la pompe se propage lentement par rapport au signal, il est possible d'observer des impulsions sub-picosecondes en régime stationnaire. Comme le signal « glisse » temporellement par rapport à la pompe, celle-ci est moins déplétée et le rendement de conversion reste important : l'énergie de la pompe est en quelque sorte stockée lorsque les impulsions sont décalées. Le décalage entre la pompe et le signal joue le rôle du « temps de récupération du système » dans les lasers.

# 3 Sources impulsionsnelles monomodes

## 3.1 Problématique

Dans cette partie, je vais décrire un autre aspect de mon travail sur les développements lasers, il s'agit de la mise au point de sources cohérentes impulsionsnelles utilisables pour la spectroscopie haute résolution. Ce type de source, présentant des durées d'émission de quelques dizaines de nanosecondes, permet d'obtenir un compromis intéressant entre une bonne résolution spectrale et une puissance crête importante. La probléma-

tique est alors de mettre au point une source où la résolution spectrale est seulement limitée par la durée finie du pulse, on parle de source limitée par « transformée de Fourier ». Dans cette situation, la résolution est souvent suffisante pour des expériences de spectroscopie, où la solution continue n'apporte pas assez d'intensité comme pour l'excitation multi-photonique ou la spectroscopie à grande distance.

Cependant, les lasers nanosecondes, même à élargissement homogène, ne sont pas monomodes car leur fonctionnement est régi par le régime transitoire. Différents procédés sont utilisés pour affiner le spectre d'émission, je présente ici deux solutions sur lesquelles j'ai été amené à travailler : d'une part, les OPO doublement résonnants (DROPO) à cavités duales que j'ai élaborés durant mon séjour post-doctoral à l'ONERA. D'autre part, je décris une chaîne laser dont le milieu amplificateur est un cristal de titane dopé saphir (Ti :Sa) qui a été réalisée au LAC. Sur ce montage, l'émission a été rendue monomode par le procédé d'injection.

## 3.2 OPO à cavités duales

Afin de détecter sélectivement des espèces telles que NO, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O...dont les bandes de vibration sont situées dans l'infrarouge moyen (2  $\mu\text{m}$  - 4,5  $\mu\text{m}$ ), il est nécessaire de disposer de sources émettant dans ce domaine spectral avec des largeurs inférieures à la centaine de MHz. Pour atteindre une telle pureté spectrale, j'ai participé au développement des OPO doublement résonnants à cavités duales, dont les principes ont été découverts à l'ONERA. Pour certaines de leurs applications, on construit des sources à fort taux de répétition, de l'ordre du kHz, en vue d'étudier des phénomènes transitoires comme l'écoulement d'un gaz dans une tuyère de moteur. Souvent aussi, pour des expériences embarquées, on se soucie de la compacité des systèmes. Je présenterai des montages dont le volume s'apparente à celui d'une boîte à chaussures.

### 3.2.1 Les OPO nanosecondes : généralités

Les OPO fonctionnant dans le régime nanoseconde sont les plus courants. Ce sont des sources qui permettent très facilement de couvrir le spectre de l'infra-rouge au proche ultra-violet. Le premier OPO fonctionnait dans ce régime [GM65], pompé par un laser à mode déclenché (« Q-Switched »). Malgré tout, comme pour les OPO continus, il a fallu attendre le début des années 90 pour voir apparaître des sources nanosecondes très fiables. Les cristaux comme le BBO ou le LBO permettent d'atteindre l'UV, jusque 300 nm, avec des impulsions allant de 10 à 100 mJ [WRH93]. Les matériaux comme le KTP [UFW95] et le KTA [BCB94] sont utilisés pour générer de l'infrarouge jusque 5  $\mu\text{m}$ . Plus au-delà, jusque 12  $\mu\text{m}$ , on peut utiliser des cristaux comme le ZnGeP<sub>2</sub> [CAC97]. Les OPO nanosecondes ont bénéficié aussi de l'arrivée des cristaux à quasi-

accord de phase qui permettent de réduire les seuils d'oscillations. Par ailleurs, les lasers Q-switch ont désormais de bonnes qualités spatiales et peuvent fonctionner à un taux de répétition important (1-10 kHz). Le fonctionnement haute cadence, associé aux cristaux périodiquement polarisés, a donné lieu à un grand nombre de montages utilisés pour la spectroscopie résolue en temps [BBK98]. Le fonctionnement des OPO nanosecondes est similaire à celui des OPO continus, mais présente quelques spécificités :

### a) Dynamique de l'impulsion

Comme la durée de l'impulsion est finie, et relativement courte, l'OPO ne fonctionne pas en régime stationnaire. L'étude de la dynamique du démarrage des OPO nanosecondes utilise un modèle analytique où le gain dépend du temps [BB79]. L'intensité nécessaire à l'oscillation, calculée en négligeant la déplétion de la pompe est donnée par :

$$I_{seuil} = \frac{1,8}{\kappa L^2} \left[ \frac{l_{cav}}{2c\tau} \ln \left( \frac{P_{s,seuil}}{P_{s,0}} \right) + 2\alpha L + \ln \left[ \frac{1}{\sqrt{R} + \ln(2)} \right] \right]^2 \quad (17)$$

où  $\kappa = \frac{2\omega_s \omega_c d_{eff}^2}{n_p n_s n_c \epsilon_0 c^3}$ ,  $R$  la réflectivité du miroir,  $\alpha$  les pertes sur l'onde signal,  $L$  la longueur du cristal et  $l_{cav}$  la longueur optique de la cavité. Dans cette formule, la puissance  $P_{s,seuil}$  représente la plus petite énergie détectable, typiquement  $0,1 \mu\text{J}$ , que l'on assimile au seuil. La puissance  $P_{s,0}$  correspond à l'énergie du bruit quantique présent dans la cavité. Ce bruit est communément assimilé à la moitié de l'énergie d'un photon dans la cavité, soit  $P_{s,0} = \frac{1}{2} E_{photon} \frac{c}{l_{cav}}$ . Pour une longueur d'onde de  $1,5 \mu\text{m}$  et une cavité de quelques centimètres, cette puissance est d'environ  $5 \times 10^{-10} \text{ W}$ . Avec ces chiffres, le terme  $\ln(P_{s,seuil}/P_{s,0})$  vaut environ 30. La valeur de la puissance du seuil détectable peut être raisonnablement variée sans changer celle du seuil calculé, car elle intervient dans l'argument du logarithme népérien.

La notion importante qui se dégage de ce modèle est celle du temps de construction. Il s'agit du temps nécessaire pour que l'amplification paramétrique, démarré d'un niveau de bruit  $P_{s,0}$  atteigne le seuil  $P_{s,seuil}$ . Afin de minimiser ce temps, il faut que la cavité, hors cristal, soit la plus courte possible ou que la durée de l'impulsion de pompe soit la plus longue possible. Ainsi, les cavités pompées avec des impulsions d'une durée allant de 5 à 30 ns n'excèdent généralement pas une dizaine de cm. Le modèle présenté ici, dit de « Brosnan et Byer » fixe les bons ordres de grandeur du seuil d'oscillation. Afin de concevoir et de dimensionner de nouvelles cavités, on a aussi recours à des simulations numériques (cf. ci-dessous).

### b) Caractère multimode :

Comme l'oscillateur fonctionne en régime transitoire, l'émission de l'OPO nanoseconde est en général multimode, la compétition de mode n'ayant pas le temps de s'établir. Le spectre émis dépend de la bande de gain paramétrique, qui se calcule comme en continu, via la condition d'accord de phase. Ce spectre dépend aussi de la finesse de la cavité et des caractéristiques de la pompe, son intensité, sa divergence et sa largeur spectrale. Afin

d'illustrer le comportement spectral d'un OPO nanoseconde, nous reportons sur la figure 20 l'enregistrement du spectre de dix impulsions consécutives émises par un SROPO. A chaque tir, plusieurs fréquences séparées d'un ou plusieurs intervalles spectral libre de la cavité sont émises. De plus, d'un tir à l'autre, la répartition de l'intensité de la lumière entre ces fréquences est fluctuante. Notons qu'en raison des différents allers-retours de

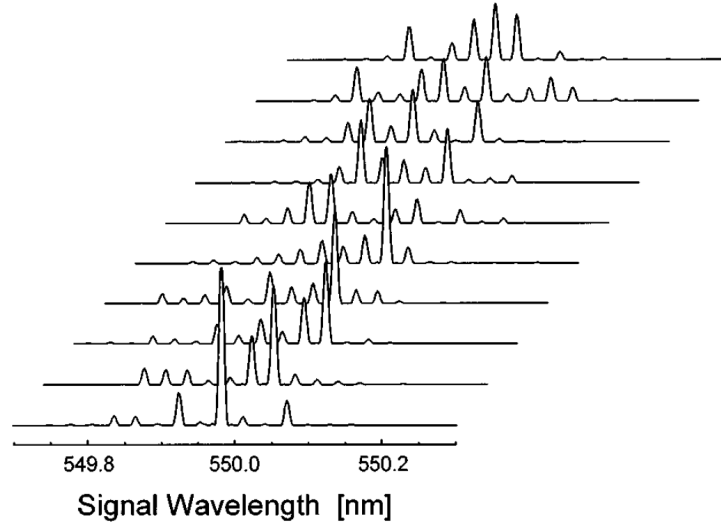


FIGURE 20 – Enregistrement des modes de l'onde signal pour 10 tirs successifs d'un SROPO impulsionnel (6 ns) fonctionnant 1,44 fois au dessus du seuil. L'intervalle entre les modes de l'OPO est de  $0,96 \text{ cm}^{-1}$  et la résolution du spectromètre est de  $0,25 \text{ cm}^{-1}$  (d'après [FW96]).

l'onde signal dans la cavité, la largeur de la bande de gain mesurée est plus étroite que celle calculée par la condition d'accord de phase. En négligeant la saturation, on montre [BB79] que la largeur effective,  $\Delta\nu(p)$ , est donnée par :

$$\Delta\nu(p) = \frac{1}{\sqrt{p}} \Delta\nu \quad (18)$$

où  $p$  désigne le nombre d'allers-retours du faisceau résonnant dans la cavité. On peut aussi calculer cette largeur en ayant recours aux simulations numériques [FW96].

Tout comme pour les lasers, il y a eu un nombre important de travaux consacrés à rendre monomode l'émission des sources nanosecondes. Pour affiner le spectre, on peut ajouter dans la cavité un étalon [Kr69], un prisme [PY72] ou un réseau [BG92]. Le désavantage de ces méthodes est une augmentation des pertes dans la cavité. Malgré tout, ces techniques sont maintenant bien maîtrisées comme l'atteste la commercialisation de systèmes (le « RAINBOW OPO » de chez Quantel, Photonic industries, ...).

### c) Qualité spatiale du faisceau :

Je me suis rarement intéressé dans mon activité de recherche à l'optimisation de la qualité spatiale des faisceaux émis par les OPO. Ce problème est pourtant délicat en régime



nanoseconde, car on utilise des cavités instables, souvent avec des miroirs plans. De plus, en général, un laser de pompe de profil gaussien ne conduit pas à gain paramétrique homogène. Le gain est plus important au centre où l'énergie est davantage concentrée que sur les bords. Ainsi, la géométrie des faisceaux générés est rarement gaussienne. A l'ONERA, j'ai participé à quelques expériences avec un cristal de RTA pompé par un faisceau dont la distribution en intensité est plate (dite « Top-hat »). L'idée est d'avoir un gain plus uniforme. Nous utilisons les ondes générées (vers  $3 \mu\text{m}$ ) pour détecter d'éventuels défauts présents dans les ailes d'avion.

### 3.2.2 Simulation numérique

Avec les nombreux développements expérimentaux et grâce à l'essor de moyens de calcul informatique, des travaux portant sur la modélisation numérique des OPOs ont débuté dans les années 90. Le code nommé SNLO a été conçu durant cette période. Il permet de simuler l'évolution des impulsions nanosecondes, en tenant compte éventuellement de l'injection. Il inclue les différentes interactions dans le cristal, la biréfringence, la diffraction, des profils réalistes pour le faisceau de pompe (temps et espace) et l'absorption éventuelle dans le cristal [SAR95]. Par la suite, des améliorations ont été proposées pour tenir compte par exemple, en ondes planes, de l'émission large bande de l'OPO [SGB99]. Le programme SNLO a été maintes fois amélioré depuis sa création. Ce logiciel libre, téléchargeable (<http://www.as-photonics.com/SNLO.html>), comporte une base de données très complète sur les cristaux non linéaires et permet de simuler le fonctionnement d'oscillateurs paramétriques. Dans ces modélisations, la dépendance spatiale des faisceaux est traitée dans un plan à deux dimensions, perpendiculaire à la direction de propagation. Généralement, on a recours aux transformées de Fourier pour évaluer les fréquences spatiales des champs, ce qui conduit à des temps de calcul assez longs. J'ai alors participé au développement et à la validation d'un code réalisé à l'ONERA, qui repose sur l'exploitation de la symétrie cylindrique du problème [DRJ01]. Cette symétrie est valable lorsque l'on considère un oscillateur avec un cristal non-linéaire à quasi-accord de phase où la propagation des faisceaux est colinéaire. Cet oscillateur doit aussi être pompé par un faisceau gaussien, voire plus largement par un faisceau de symétrie cylindrique. Dans cette géométrie, la symétrie du problème permet d'utiliser la transformée de Hankel à une dimension, ce qui conduit à gagner un facteur 60 sur les temps de calculs. La possibilité d'avoir recours à un code maison donne aussi plus de souplesse pour concevoir et modéliser de nouvelles cavités. Je ne décris pas le code ici, je reproduis simplement sur la figure 21 le résultat de la comparaison entre des expériences et des simulations. Ce code est encore utilisé actuellement à l'ONERA et une des dernières améliorations a été la prise en compte du fonctionnement multimode des SROPO nanosecondes.

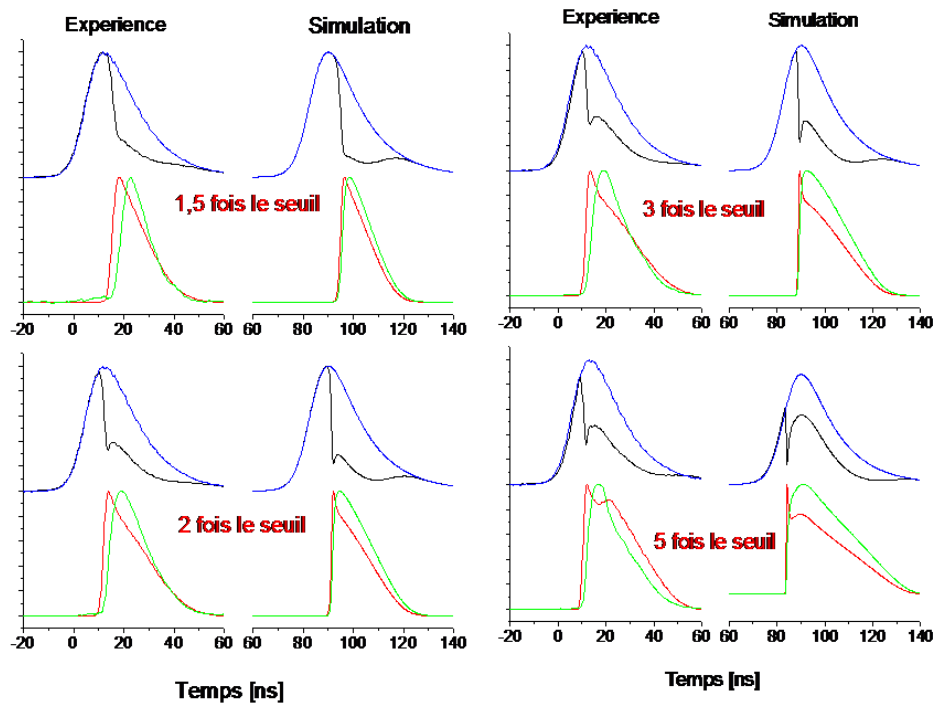


FIGURE 21 – Evolution dynamique des impulsions de la pompe (en bleu), du signal (en vert), du complémentaire (en rouge) et de la pompe déplétée (en noir) dans un SROPO ns. Comparaison des expériences et de la modélisation.

### 3.2.3 DROPO à cavité duales

Comme nous l'avons rappelé, les OPO pompés en régime impulsionnel ont un caractère multimode. Afin de contourner cette difficulté, il a été développé à l'ONERA, depuis une dizaine d'années, des OPO doublement résonnants à cavités duales. Le principe de fonctionnement des DROPO à cavités duales, schématisé sur la figure 22 consiste à faire osciller dans des cavités séparées les deux ondes signal et complémentaire générées par la conversion paramétrique. Les cavités ont une partie commune contenant le cristal non-linéaire mais de façon plus originale, on choisit et ajuste indépendamment leur longueur pour :

1. assurer le fonctionnement doublement résonnant quelle que soit la longueur d'onde d'émission (suppression des effets de cluster) ;
2. sélectionner un seul couple de modes longitudinaux pour lequel l'oscillation des ondes signal et complémentaire peut s'établir (effet Vernier). L'émission est monomode et stable ;
3. accorder continûment la fréquence de l'OPO en déplaçant simultanément les deux miroirs.

Ajoutons que la faible valeur du seuil d'oscillation des OPO en configuration doublement résonnante offre la possibilité d'utiliser des lasers compacts, fonctionnant à une cadence de répétition élevée.

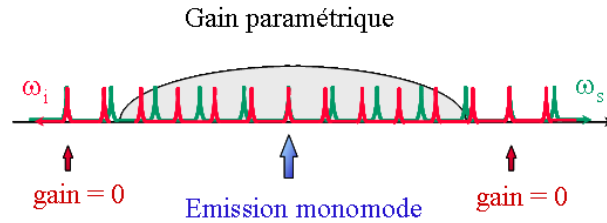


FIGURE 22 – Principe de l'OPO doublement résonnant à cavités duales.

Bien que simple dans son principe de fonctionnement, la sélection des modes par effet Vernier nécessite de prendre en compte différents paramètres tels que la largeur de gain paramétrique, la finesse de chaque cavité et le recouvrement partiel des modes ou encore la dispersion optique du cristal non linéaire. La première expérience de démonstration du principe de sélection de modes a été effectuée en 2000 et était accompagnée d'une étude théorique détaillée [SRG00]. Ce travail a permis d'aboutir à une modélisation et à une représentation graphique du recouvrement des modes à partir desquelles il est possible d'établir les zones de fonctionnement monomode longitudinal. Les conditions optimales sont obtenues avec des cavités courtes de grande finesse et pour une largeur de gain paramétrique étroite (quelques  $\text{cm}^{-1}$ ).

Un premier type de cavité a été construit à l'ONERA, représenté sur la figure 23.a où la séparation des ondes signal et complémentaire est assurée par une lame inclinée. La mise en oeuvre de cette configuration requiert l'accord de phase de type II et permet de maintenir le fonctionnement monomode alors que l'OPO oscille au voisinage de la dégénérescence. L'expérience a été réalisée avec un KTP type II de 6 mm de long et une lame de Brewster qui permet une discrimination entre les deux ondes polarisées perpendiculairement supérieure à 95% [RDL02]. Les miroirs  $M_2$  et  $M_3$ , de la figure 23.a, sont montés sur des cales piezo-électriques et ont une haute transmission pour le complémentaire et le signal, de 88% et 82%, ce qui favorise les découplages des cavités. L'OPO est pompé par un laser construit à l'ONERA, émettant à 532 nm des impulsions de 23 ns sur un diamètre de 1,5 mm [LSB96]. Le miroir de couplage,  $M_3$  dont la réflectivité est de 42 %, permet d'extraire l'onde complémentaire. Le seuil d'oscillation est de 2 mJ. L'émission est rendue monomode pour un complémentaire compris entre 1069 et 1092 nm et pour un signal compris entre 1060 et 1038 nm. Avec des rayonnements de longueurs d'onde aussi proches de la dégénérescence, la bande de gain est importante. Sans asservissement de la cavité, on n'observe aucun saut de mode durant 20 minutes. En ajustant séparément les longueurs des cavités en sens opposés pour maintenir la coïncidence de modes, on varie la fréquence de l'OPO continûment sur un large domaine (40

GHz), et sans ajustement de l'accord de phase.

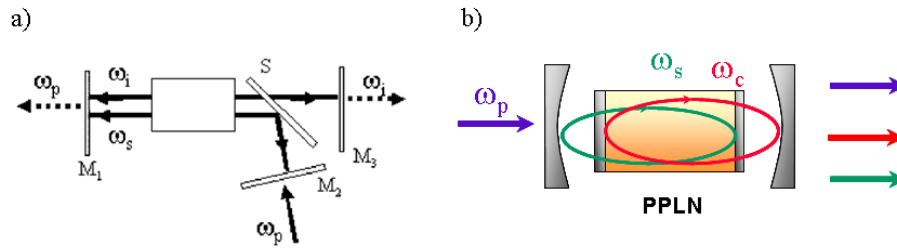


FIGURE 23 – Deux schémas de cavités duales. a) Cavité en L avec une séparation à  $45^\circ$  des deux ondes. b) Cavité linéaire avec des miroirs déposés sur le cristal non-linéaire.

J'ai participé à la conception et au montage d'un autre prototype [DDL02], reposant sur une nouvelle configuration où les deux cavités signal et complémentaire sont imbriquées l'une dans l'autre (cf. FIG. 23.b). Cette géométrie en ligne permet de réduire au maximum les longueurs des deux cavités tout en maintenant la possibilité de les ajuster séparément. On réalise des structures très compactes en déposant les miroirs internes directement sur les faces du cristal non-linéaire. Une structure semi-monolithique, dimensionnée grâce au code programmé à l'ONERA, a ainsi été réalisée et testée dans le domaine infrarouge moyen pour des applications de détection de polluants. Le cristal non-linéaire est un ppLN de 6 mm dont la température est contrôlée à mieux que  $1/100$  °C près. Deux autres miroirs concaves, de rayons de courbure 50 et 20 mm, assurent le fonctionnement doublement résonnant en cavité stable. Ces miroirs sont montés sur des cales piézo-électriques et les longueurs des cavités signal et complémentaire sont de 14,7 et 15,4 mm, assurant le fonctionnement monomode malgré une bande de gain mesurée de 7 nm à 3990 nm. L'oscillateur est pompé par un laser Nd :YAG (Innolight, modèle Mephisto Q) monomode, haute cadence ( $>12$  kHz), avec des impulsions de 12 ns et d'une énergie de  $20 \mu\text{J}$ . Pour une énergie de pompe maximale, le système délivre  $0,5 \mu\text{J}$  à une longueur d'onde comprise 3,8 et  $4,1 \mu\text{m}$  via un coupleur de réflectivité de 70 %. Nous avons estimé la largeur de raie à moins de 80 MHz et la stabilité de l'OPO est très bonne, la dérive en fréquence est inférieure à 120 MHz sur une dizaine de minutes. Dans un premier temps, on a pu effectuer des balayages sans sauts de mode d'environ 1 GHz.

Depuis 2002, ces montages ont été largement améliorés notamment au cours de la thèse d'A. Desormeaux [De04]. Un effort particulier a été mené pour contrôler finement les retours éventuels de la pompe dans l'oscillateur. Une version réalisée en 2004 a été utilisée pour mesurer le spectre (sur  $5 \text{ cm}^{-1}$ ) d'absorption de  $\text{N}_2\text{O}$  aux environs de  $3,9 \mu\text{m}$  [DLR04]. Par la suite, le balayage en longueur d'onde et l'asservissement ont été entièrement automatisés durant la thèse d'A. Berrou [Be08]. Enfin en 2009, un OPO à cavités duales, suivi d'amplificateurs paramétriques, a été construit pour la conception d'un LIDAR pour le  $\text{CO}_2$  [RSG09]. La source, monomode, délivre jusque 11 mJ par tir

et sa stabilité est de  $\pm 3$  MHz sur une trentaine de secondes.

### 3.3 Chaîne impulsionnelle du LAC

Un autre moyen d'obtenir une impulsion monomode en dépit du fonctionnement transitoire du laser, est de l'injecter par un rayonnement monomode. Le caractère bosonique des photons assure que dès le démarrage de l'effet laser, l'onde produite est monochromatique, à la même fréquence que celle du rayonnement incident. En prenant garde à bien ajuster l'alignement des faisceaux et la longueur de la cavité, on obtient jusque 99,8 % de l'intensité de lumière impulsionnelle à la même fréquence que celle du laser d'injection [YBM00].

Les sources injectées développées jusqu'à maintenant au laboratoire utilisaient des milieux amplificateurs à colorant qui sont malheureusement limités en terme de qualité de faisceau, de stabilité et de facilité de maintenance. J'ai participé à la construction d'une source tout solide constituée de deux étages (cf. FIG. 24). Le premier, l'injecteur basse puissance apporte la qualité spectrale requise. Il s'agit d'un laser quasi-continu Ti :Sa fonctionnant en anneau. Le second étage est constitué d'un autre Ti :Sa ou d'un OPO, tous deux susceptibles d'être pompés par un Nd :YAG impulsionnel, doublé en fréquence. L'ensemble est une source laser accordable (de 550 à 2000 nm), impulsionnelle (de durée 20 à 50 ns, d'une énergie de 1 à 10 mJ suivant le domaine spectral, émettant à une cadence de 20 Hz) et de grande finesse (d'une résolution spectrale inférieure à 30 MHz). Des étages de conversion non linéaire hors cavité permettront d'atteindre 350 nm vers le bleu et 10  $\mu\text{m}$  vers le rouge.

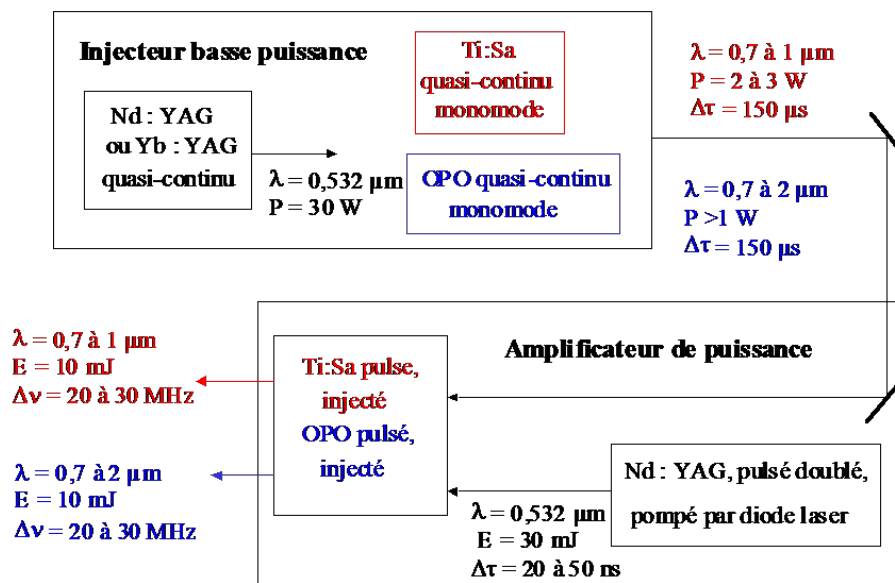


FIGURE 24 – Schéma de la chaîne laser. En rouge, avec des cavités laser Ti :Sa ; en bleu, avec des oscillateurs paramétriques optiques.

### 3.3.1 Description générale

La réalisation de la chaîne laser a débuté avant mon arrivée comme permanent au laboratoire et les différents ensembles ont été mis au point sur une dizaine d'années. Sur les lasers que nous développons, L. Cabaret réalise tous les calculs en concentration des dopants des cristaux à gain laser ainsi que les optimisations de géométrie de pompage. Ces modélisations sont réalisées soit par des codes maisons ou par le logiciel Zemax.

Dans ce manuscrit, je m'attarde sur la description de deux « briques » originales de la chaîne laser. D'une part un oscillateur fonctionnant en mode déclenché et émettant des impulsions de durée ajustable. D'autre part un laser Ti :Sa impulsionnel injecté. Par ailleurs, je signale ici brièvement le développement d'autres éléments originaux :

1. les lasers de pompe quasi-continus ont déjà été décrits dans la section 1.2.2;
2. pompé par ce type de sources, l'oscillateur Ti :Sa quasi-continu délivre jusqu'à 3 W crête de lumière accordable entre 700 et 980 nm avec une dynamique de balayage (environ  $5 \text{ cm}^{-1}$ ) bien supérieure à celles des dispositifs commerciaux. Le régime quasi-continu impose par ailleurs des difficultés pour asservir le mode émis par le laser Ti :Sa pendant la durée de son émission (150  $\mu\text{s}$ ). Le développement d'un système d'asservissement intégrant un étalon Fabry-Perot électro-optique couplé à une modulation-détection synchrone rapide à 270 kHz a été nécessaire et son fonctionnement a été testé avec succès [CCL01]. Durant l'émission, une dérive en fréquence de 60 MHz, liée au chauffage du cristal laser, est compensée en appliquant une rampe de tension sur la monture piezo-électrique d'un miroir de la cavité ;
3. l'amplification de la chaîne est assurée par un étage de Nd :YAG pompé par flash. Nous avons essayé vainement d'utiliser une conjugaison de phase dans un matériau solide (cristal de d-LAP). Actuellement, l'énergie obtenue à 1,064  $\mu\text{m}$  n'est que de 100 mJ. Nous espérons atteindre les 200 mJ grâce à un amplificateur pompé par diode reposant sur un système breveté<sup>6</sup> ;
4. nous avons réalisé un SROPO impulsionnel injecté. Le cristal non linéaire était un cristal de KTP. Comme la pompe est monomode, les deux rayonnements produits sont aussi monomodes. Le doublage de l'onde complémentaire nous a permis d'atteindre le spectre visible. L'ensemble de la chaîne, avec cet étage d'OPO doublé, est photographié sur la figure 25.

### 3.3.2 Laser de pompe nanoseconde à durée d'impulsion variable

L'oscillateur de l'étage impulsionnel de la chaîne est constitué d'une cavité laser dont le milieu amplificateur est un cristal de Nd :YAG en forme de demi cylindre. Ce milieu

---

6. L. Cabaret, Brevet international n° WO 2007/088263 publié le 9 août 2007

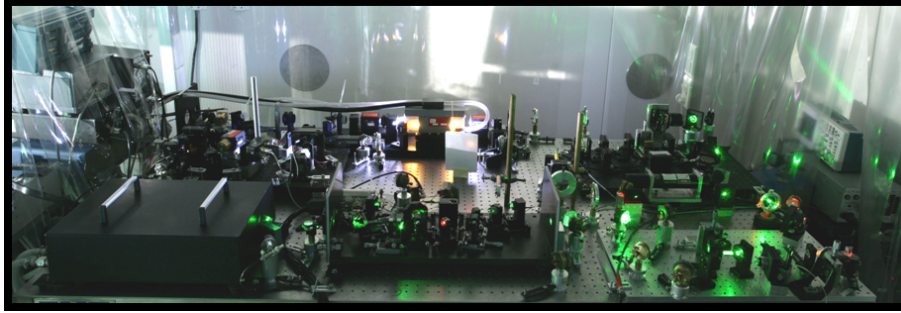


FIGURE 25 – Système laser de la salle blanche avec un laser Ti :Sa injectant un OPO de KTP.

laser est pompé par diode (avec un maximum de 240 W) avec un taux de répétition de 20 Hz. L'oscillateur émet volontairement une faible énergie ( $< 1$  mJ) de façon à obtenir d'excellentes caractéristiques spatiales et temporelles du faisceau, qui peut être amplifié dans de bonnes conditions. L'originalité de ce laser réside dans la possibilité d'ajuster sa durée d'impulsion entre 20 et plus de 50 ns [CD07]. Cette souplesse nous permet de choisir une durée d'impulsion bien adaptée aux conversions non linéaires envisagées. Une impulsion courte permet d'avoir un doublage en fréquence efficace. S'il s'agit de pomper un OPO, on privilégiera des impulsions plus longues (cf. l'équation 17).

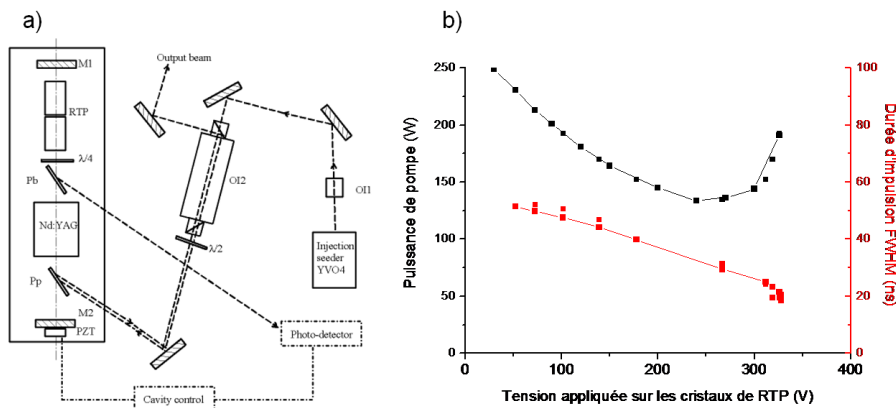


FIGURE 26 – a) Schéma de la cavité impulsionnelle. OI : isolateur optique, M miroir, Pb : lame polarisante à angle de Brewster, Pp : lame polarisante, PZT : cale piezo-électrique b) Evolution de la puissance de pompe (en noir) et de la durée d'impulsion (en rouge) en fonction de la tension appliquée sur les cristaux de RTP. L'énergie est de  $300 \mu\text{J}$  et les courbes théoriques sont calculées avec des pertes fixées à 5% par tour. Les points correspondent aux mesures et les lignes aux calculs.

Dans le régime de fonctionnement en mode déclenché (Q-switch), les pertes du laser sont volontairement maintenues très grandes durant le pompage du milieu à gain. Ainsi on accumule de l'énergie dans le milieu amplificateur, et lorsque les pertes sont remises à une valeur basse, suffisante pour que l'émission laser s'établisse, il se crée une impul-

sion géante. Le modèle analytique courant (cf. par exemple le chapitre 26 du livre de Siegman [Si86]) montre que la durée d'impulsion varie avec la durée de vie des photons dans la cavité (c'est-à-dire le couplage) et le taux de pompage. Dans notre cavité, représentée sur la figure 26.a, le couplage est réalisé par réflexion du champ sur une lame polarisante. Le déclenchement électro-optique se produit en changeant la polarisation du champ électrique en appliquant un front de tension sur une paire de cristaux de RTP (RbTiOPO4). En jouant simultanément sur la puissance de pompage, sur l'amplitude du front de tension de déclenchement et sur l'orientation de la lame polarisante (donc sur la réflectivité du coupleur), n'importe quelles valeurs d'énergie et de durée d'impulsion peuvent être atteintes dans la gamme 0 - 1 mJ et 15 - 50 ns.

Comme représenté sur la figure 26.b, on peut ajuster la durée d'impulsion tout en gardant l'énergie constante, ici de 300  $\mu\text{J}$ . Nous représentons sur cette figure les points expérimentaux et les courbes issues de la modélisation. La durée d'impulsion est limitée aux temps courts à 20 ns. L'intensité crête correspondante est de l'ordre de 260 MW/cm<sup>2</sup>. Cette valeur est déjà proche du seuil de dommage des composants ce qui nous empêche de raccourcir encore l'impulsion. Les durées d'impulsion maximales sont de 50 ns limitées cette fois par la puissance de pompage disponible. En plus d'une publication, ce système original d'ajustement de la durée d'impulsion a donné lieu à un dépôt de brevet<sup>7</sup>.

La cavité linéaire est injectée par un micro-laser continu monomode de faible puissance (environ 20 mW) basé sur un milieu laser de YVO<sub>4</sub>. Ce laser, choisi très court avec une longueur d'environ 200  $\mu\text{m}$ , est monomode par construction [KB90] et l'asservissement en température de cette micro-cavité suffit à stabiliser le mode sur +/- 100 MHz. Ce laser est couplé à la cavité impulsionnelle à travers la lame polarisante. On emploie deux isolateurs de Faraday assurant une isolation de 60 dB, afin d'éviter tout retour et toute perturbation dans le laser d'injection. Un des isolateurs nous sert aussi à séparer le faisceau continu entrant du faisceau impulsionnel sortant.

Différentes méthodes d'asservissement des lasers impulsionnels existent afin d'assurer la mise en phase de la cavité avec la fréquence du laser maître, assurant ainsi le fonctionnement monomode longitudinal. Par exemple, l'impulsion peut être détectée par une photodiode et le temps de construction minimisé [Ra85]. Avec cette technique, l'asservissement est sensible aux perturbations qui peuvent se produire entre 2 tirs successifs. On peut aussi balayer la cavité, détecter le signal d'interférences et la résonance, puis déclencher rapidement l'impulsion laser [FHL91]. Cette fois, le temps de déclenchement n'est pas rigoureusement fixe. Nous avons choisi d'asservir la cavité sur le mode injecté de manière classique en modulant la longueur optique de la cavité (1,5 kHz) et en détectant en phase, à la fréquence de modulation, un signal d'interférence. Cependant, contrairement aux asservissements en fréquence des lasers continus, des perturbations

---

7. L. Cabaret et C. Drag, Brevet international n° WO 2007/125269 publié le 8 novembre 2007



apparaissent dans notre système. Le laser impulsionnel éblouit la photodiode qui détecte le signal d'interférences, on coupe alors le système d'asservissement durant quelques millisecondes avant et après le tir déclenché. De plus, durant l'impulsion, la longueur optique de la cavité varie en raison du changement d'indice des cristaux de RTP avec la tension appliquée et de la variation d'indice dans le barreau de Nd :YAG en raison d'effets thermiques. Pour corriger ces éventuels déphasages, on ajoute une correction sur la tension de la cale piezo-électrique. Au final, on vérifie la qualité de l'injection sur le temps de construction de l'impulsion qui est minimisé lorsque l'émission est monomode. Le dispositif mis au point est particulièrement robuste puisqu'il peut fonctionner sans aucun décrochage pendant une journée entière. L'injection permet aussi de réduire le « jitter » temporel observé tir à tir, limité à une nanoseconde durant une heure.

### 3.3.3 Ti :Sa monomode

Le laser Ti :Sa qui constitue l'étage accordable de puissance a été récemment construit [CD10]. Cet étage est pompé par le laser Nd :YAG nanoseconde qui peut être multimode en raison de la large gamme d'absorption du Ti :Sa. Pompé sur une vingtaine de nanoseconde, le laser Ti :Sa fonctionne dans le régime de « gain déclenché », l'impulsion émise sera aussi de l'ordre d'une vingtaine de nanosecondes.

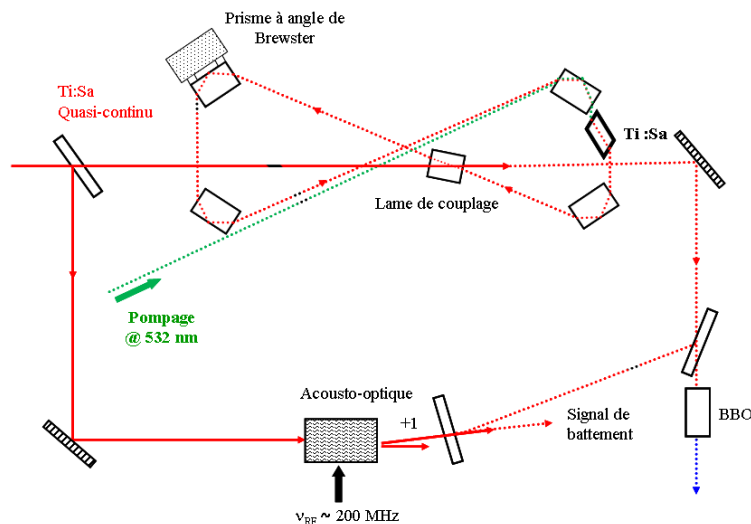


FIGURE 27 – Cavité Ti :Sa impulsionnelle injectée et représentation du montage d'hétérodynage.

La cavité en anneau dont la géométrie s'apparente à un X, est représentée sur la figure 27. Elle contient 4 prismes à réflexion totale, un coupleur et un cristal de Ti :Sa. Les prismes sont orientés à l'angle de Brewster en incidence et fonctionnent en réflexion totale interne. Ils sont équivalents à des miroirs présentant des seuils de dommages importants avec une réflectivité très achromatique : ils sont totalement réfléchissants

pour la gamme 700 à 1000 nm. Le couplage est assuré par la réflexion d'une partie du faisceau sur une lame épaisse. Le traitement de cette lame permet sur la gamme d'émission du laser d'avoir une intensité presque constante. L'autre face est traitée anti-reflet. Le cristal de Ti :Sa dopé à 0,15 % est un parallélépipède de  $5 \times 7 \times 15\text{mm}^3$ , taillé aussi à angle de Brewster. Le faisceau de pompe, à 532 nm, est introduit dans la cavité par un des prismes, ce qui assure un pompage longitudinal du cristal amplificateur, sur une surface de l'ordre du  $\text{mm}^2$ . Le seuil d'oscillation est d'une dizaine de 10 mJ et pour 30 mJ de pompe, le laser délivre 5 mJ émis dans les 2 directions. Nous nous sommes rendus compte, malgré l'utilisation de la technique d'injection décrite ci-dessous, que nous avons des difficultés à accorder la fréquence du laser sur tout le spectre d'émission du cristal de Ti :Sa. Le maximum de la bande de gain se trouve vers 790 nm mais l'émission libre la plus favorable se situe vers 770 nm en raison de l'achromaticité du montage. Afin d'accorder la longueur d'onde vers 848 nm, dans le but d'atteindre le seuil de photodétachement de l'oxygène négatif, nous avons légèrement modifié la cavité en supprimant un prisme parallélépipédique et en incluant deux prismes triangulaires, situé avant le cristal de Ti :Sa. L'ajout de ces prismes affine le spectre d'émission libre, limité à 2 nm. En changeant la direction de propagation du faisceau dans la cavité, on accorde facilement le domaine d'émission. Dans cette configuration, le seuil d'oscillation est plus élevé, d'environ 18 mJ et on extrait de la cavité 3 mJ dans les deux directions de propagation pour 25 mJ de pompe.

L'injection s'effectue avec le laser Ti :Sa quasi-continu tout en asservissant avec un circuit électronique rudimentaire la longueur de la cavité injectée. Nous détectons avec une photodiode une partie du signal quasi-continu sur une porte temporelle précédant l'émission impulsionnelle. L'amplitude de ce signal varie avec la longueur de la cavité sur laquelle on rétroagit avec un des prismes montés sur une cale piézo-électrique. La fréquence moyenne durant l'impulsion émise après injection est stabilisée à  $\pm 30$  MHz près sur une demi heure. Nous avons enregistré des balayages d'environ  $2\text{ cm}^{-1}$  sans saut de modes en variant la longueur d'onde du faisceau maître.

Les mesures de fréquence précédentes, réalisées avec un spectromètre ayant un temps de réponse de l'ordre de la milliseconde, ne donnent pas accès à l'évolution éventuelle de la fréquence  $f_{inst}$  durant l'impulsion. Afin de mesurer la cohérence temporelle de la source dans des temps très courts, on réalise un montage d'hétérodynage comme représenté sur la figure 27 [FDC92]. On détecte sur une photodiode rapide la superposition du champ du laser impulsionnel avec le champ Q-CW jouant le rôle d'oscillateur local. Sa fréquence est décalée par l'utilisation d'un modulateur acousto-optique. On enregistre le battement de ces deux champs lasers, on reconstruit l'amplitude et la « fréquence instantanée » par le calcul comme le montre le graphe de la figure 28. En effet, le signal de battement est donné par :

$$V(t) \propto 2E_{QCW}E_P(t)\cos(\omega_m t + \phi(t)) \quad (19)$$

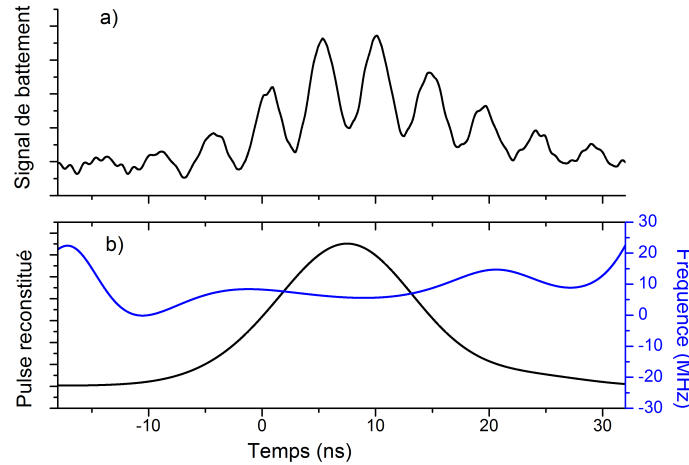


FIGURE 28 – a) Enregistrement du signal de battement entre le laser impulsif et l'injecteur quasi-continu. b) Reconstruction de l'amplitude et de la « fréquence instantanée » à partir du signal de battement.

avec

$$f_{inst} = -\frac{1}{2\pi} \frac{d\phi}{dt} \quad (20)$$

où le champ quasi-continu  $E_{QCW}$  est considéré comme constant.  $E_P(t)$  est l'amplitude du champ impulsif et  $\omega_m$  la pulsation de modulation. Ces méthodes ont été utilisées sur un système laser à colorants [FDC92], un OPO [WHO04] et un laser Ti :Sa [HDU07]. Le choix de la fréquence de modulation résulte du compromis entre la résolution temporelle souhaitée, typiquement une fraction de la durée de l'impulsion, et de la bande passante de détection. Sur l'enregistrement de la figure 28, la « fréquence instantanée » de la source est stationnaire durant l'impulsion. Sa largeur spectrale est exclusivement limitée par la durée finie du pulse, on parle d'impulsion limitée par « transformée de Fourier ».

Dans certains cas, la fréquence  $f_{inst}$  varie durant l'impulsion comme on peut le voir sur l'enregistrement reporté sur la figure 29. Dans les OPO, ce glissement de fréquence est dû à un désaccord de phase dans le cristal non linéaire [WHO04]. Dans les milieux fluorescents à gain, le décalage s'apparente au « frequency pulling » observé dans les lasers continus. Durant l'émission laser, le taux de variation de la population excitée, ou autrement dit, le taux de variation du gain, se traduit par une variation de l'indice du milieu, les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité électrique étant reliées. Dans le cas de l'amplification d'un laser à colorant, la dérive en fréquence a été modélisée analytiquement [MGE94]. Soit  $L$  la longueur du milieu amplificateur,  $n$  l'indice de réfraction,  $\alpha'$  la polarisabilité,  $N_1$  la population de l'état excité du milieu laser et  $\lambda$  la longueur d'onde :

$$f_{inst}(L, t) = f_{inst}(0, t) - \frac{L}{2n(\nu)\lambda} \alpha'(\nu) \frac{d}{dt} N_1(t) \quad (21)$$

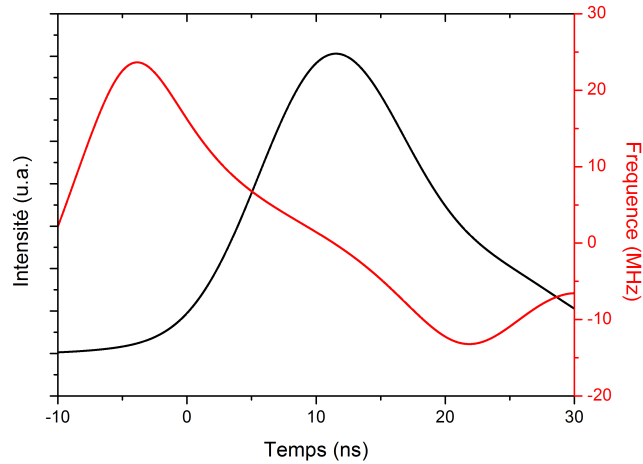


FIGURE 29 – *Intensité et « fréquence instantanée » enregistrées pour le laser injecté à 810 nm, soit à une longueur d'onde de 20 nm plus rouge que celle du maximum de la bande de gain.*

Lorsque l'émission se produit au maximum de la bande de gain, il n'y a pas de décalage en fréquence car la valeur de  $\alpha'(\nu)$  est nulle. Le décalage se produit de part et d'autre du maximum de gain. Sur l'exemple de la figure 29, l'émission est de 20 nm plus rouge, où  $\alpha'(\nu)$  est négatif. Au total le glissement est négatif car  $\frac{d}{dt}N_1(t)$  est toujours négatif dans le cas du Ti :Sa qui fonctionne dans le régime de « gain déclenché ». En effet, le gain est déjà au maximum au démarrage de l'impulsion, il décroît tout au long de l'émission.

Notons aussi que nous avons parfois observé un décalage entre la fréquence du laser Q-CW et celle de l'étage impulsif. Dans la cavité injectée, la fréquence émise est celle d'un des modes longitudinaux de la cavité froide. Ainsi la fréquence de sortie du laser impulsif n'est pas rigoureusement celle de l'injecteur, mais la plus proche du mode de cavité [BM94].

En conclusion, ces mesures de fréquence précises dans le régime impulsif sont importantes pour des applications spectroscopiques. Nous avons ainsi amélioré la détermination de l'affinité électronique de l'iode avec cette chaîne laser (cf. 2<sup>nde</sup> partie). Comme autre exemple, on peut citer les mesures de la fréquence de transition à deux photons entre les états 1S et 2S de l'hydrogène qui ont été réinterprétées en tenant compte des éventuelles dérives spectrales du laser impulsif [FDC92].

## Références

- [ABD62] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P.S. Pershan, *Interactions between light waves in a nonlinear dielectric*, Physical Review **127** (1962), no. 6, 1918–1939.
- [ATB98] R. Al-Tahtamouni, K. Bencheikh, R. Storz, K. Schneider, M. Lang, J. Mlynek, and S. Schiller, *Long-term stable operation and absolute frequency stabilization of a doubly resonant parametric oscillator*, Applied Physics B : Lasers and Optics **66** (1998), no. 6, 733–739.
- [BAM98] W.R. Bosenberg, J.I. Alexander, L.E. Myers, and R.W. Wallace, *2.5-W, continuous-wave, 629-nm solid-state laser source*, Optics letters **23** (1998), no. 3, 207–209.
- [BB79] S. Brosnan and R. Byer, *Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies*, IEEE Journal of Quantum Electronics **15** (1979), no. 6, 415–431.
- [BBD06] S. Bahbah, F. Bretenaker, and C. Drag, *Single-frequency quasi-continuous red radiation generated by a green-pumped singly resonant optical parametric oscillator*, Optics letters **31** (2006), no. 9, 1283–1285.
- [BBK98] U. Bäder, J. Bartschke, I. Klimov, A. Borsutzky, and R. Wallenstein, *Optical parametric oscillator of quasi-phasematched LiNbO<sub>3</sub> pumped by a compact high repetition rate single-frequency passively Q-switched Nd : YAG laser*, Optics Communications **147** (1998), no. 1-3, 95–98.
- [BCB94] W.R. Bosenberg, L.K. Cheng, and J.D. Bierlein, *Optical parametric frequency conversion properties of KTiOAsO*, Applied Physics Letters **65** (1994), 2765.
- [BDA96a] W.R. Bosenberg, A. Drobshoff, J.I. Alexander, L.E. Myers, and R.L. Byer, *93% pump depletion, 3.5-W continuous-wave, singly resonant optical parametric oscillator*, Optics Letters **21** (1996), no. 17, 1336–1338.
- [BDA96b] W.R. Bosenberg, A. Drobshoff, J.I. Alexander, L.E. Myers, and R.L. Byer, *Continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled LiNbO<sub>3</sub>*, Optics Letters **21** (1996), no. 10, 713–715.
- [Be08] A. Berrou, *Développements d'un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gazs et ses applications*, Thèse, Université Paris-sud 11, 2008.
- [BFM96] F. Bondu, P. Fritschel, C.N. Man, and A. Brillet, *Ultrahigh-spectral-purity laser for the VIRGO experiment*, Optics letters **21** (1996), no. 8, 582–584.
- [BG92] W. R. Bosenberg and D. R. Guyer, *Single-frequency optical parametric oscillator*, Applied Physics Letters **61** (1992), 387.

- [BK68] G.D. Boyd and D.A. Kleinman, *Parametric interaction of focused Gaussian light beams*, Journal of Applied Physics **39** (1968), 3597.
- [BKP74] M.F. Becker, D.J. Kuizenga, D.W. Phillion, and A.E. Siegman, *Analytic expressions for ultrashort pulse generation in mode-locked optical parametric oscillators*, Journal of Applied Physics **45** (1974), 3996.
- [Bl80] N. Bloembergen, *Conservation laws in nonlinear optics*, Journal of the Optical Society of America **70** (1980), no. 11, 1429-1436.
- [BM94] M.S. Bowers and S.E. Moody, *Cavity equations for a laser with an externally injected signal*, Journal of the Optical Society of America B **11** (1994), no. 11, 2266–2275.
- [Bo03] R. W. Boyd, *Non linearar optics, 2nd edition*, Elsevier, 2003.
- [BOY69] R.L. Byer, M.K. Oshman, J.F. Young, and S.E. Harris, *Visible cw parametric oscillator*, IEEE Transactions on Electron Devices **16** (1969), no. 6, 603–604.
- [BWB95] N.P. Barnes and J.A. Williams-Byrd, *Average power effects in parametric oscillators and amplifiers*, Journal of the Optical Society of America B **12** (1995), no. 1, 124–131.
- [Ca09] L. Cabaret, *A diode-pumped, frequency-doubled, tunable single-mode quasi-continuous-wave Yb : YAG laser emitting 70 W peak power at 515 nm*, Applied Physics B : Lasers and Optics **94** (2009), no. 1, 71–79.
- [CAC87] G. Camy, R. Amer, and N. Courtier, *Une nouvelle technique de stabilisation en fréquence d'un laser sur une cavité de Fabry-Perot*, Revue de Physique Appliquée **22** (1987), no. 12, 1835–1840.
- [CAC97] S. Chandra, T.H. Allik, G. Catella, R. Utano, and J.A. Hutchinson, *Continuously tunable, 6–14  $\mu\text{m}$  silver-gallium selenide optical parametric oscillator pumped at 1.57  $\mu\text{m}$* , Applied Physics Letters **71** (1997), 584.
- [CCL01] L. Cabaret, P. Camus, R. Leroux, and J. Philip, *Intracavity LiNbO<sub>3</sub> Fabry-Perot etalon for frequency stabilization and tuning of a single-mode quasi-continuous-wave titanium : sapphire ring laser*, Optics Letters **26** (2001), no. 13, 983–985.
- [CD07] L. Cabaret and C. Drag, *Single mode injection seeded Nd : YAG oscillator with an adjustable pulse length between 20 and 50 ns*, Eur. Phys. J. Appl. Phys **37** (2007), 65–72.
- [CD10] Cabaret, L. and Drag, C., *Highly scannable injection seeded nanosecond Ti : sapphire ring laser*, Eur. Phys. J. Appl. Phys. **51** (2010), 20702.
- [Ch96] C. Chardonnet, *Laser monofréquence et stabilisation*, Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales **4** (1996), 189–217.

- [CKM94] E.C. Cheung, K. Koch, and G.T. Moore, *Frequency upconversion by phase-matched sum-frequency generation in an optical parametric oscillator*, Optics Letters **19** (1994), no. 23, 1967–1969.
- [Co08] D. Comparat, *Expériences avec des atomes de Rydberg et des molécules ultrafroids*, Thèse, Université Paris-Sud 11, 2008.
- [CPC00] L. Cabaret, J. Philip, and P. Camus, *Transient frequency shift in a single-mode quasi-continuous diode-pumped Nd : YAG laser*, IEEE Journal of Quantum Electronics **36** (2000), no. 11, 1323–1332.
- [CSH04] V. Crozatier, F. Seze, L. Haals, F. Bretenaker, I. Lorgere, and J.L.L. Gouët, *Laser diode stabilisation for coherent driving of rare earth ions*, Optics Communications **241** (2004), no. 1-3, 203–213.
- [CT71] A.J. Campillo and C.L. Tang, *Extending the tuning range of tunable oscillators by upconversion*, Applied Physics Letters **19** (1971), 36.
- [DDL02] C. Drag, A. Desormeaux, M. Lefebvre, and E. Rosencher, *Entangled-cavity optical parametric oscillator for mid-infrared pulsed single-longitudinal-mode operation*, Optics letters **27** (2002), no. 14, 1238–1240.
- [De04] A. Desormeaux, *Développement d'un oscillateur paramétrique optique mono-fréquence et réalisation d'un montage pour la spectroscopie infrarouge non linéaire*, Thèse, Université Paris-Sud 11, 2004.
- [DHK83] R.W.P. Drever, J.L. Hall, F.V. Kowalski, J. Hough, G.M. Ford, A.J. Munley, and H. Ward, *Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator*, Applied Physics B : Lasers and Optics **31** (1983), no. 2, 97–105.
- [DLR04] A. Desormeaux, M. Lefebvre, E. Rosencher, and J.P. Huignard, *Mid-infrared high-resolution absorption spectroscopy by use of a semimonolithic entangled-cavity optical parametric oscillator*, Optics letters **29** (2004), no. 24, 2887–2889.
- [DRJ01] C. Drag, I. Ribet, M. Jeandron, M. Lefebvre, and E. Rosencher, *Temporal behavior of a high repetition rate infrared optical parametric oscillator based on periodically poled materials*, Applied Physics B : Lasers and Optics **73** (2001), no. 3, 195–200.
- [ERS82] D.S. Elliott, R. Roy, and S.J. Smith, *Extracavity laser band-shape and bandwidth modification*, Physical Review A **26** (1982), no. 1, 12–18.
- [ET93] R.J. Ellingson and C.L. Tang, *High-power, high-repetition-rate femtosecond pulses tunable in the visible*, Optics Letters **18** (1993), no. 6, 438–440.
- [ETD98a] T.J. Edwards, G.A. Turnbull, M.H. Dunn, M. Ebrahimzadeh, and F.G. Colville, *High-power, continuous-wave, singly resonant, intracavity optical parametric oscillator*, Applied Physics Letters **72** (1998), 1527.

- [ETD98b] T.J. Edwards, G.A. Turnbull, M.H. Dunn, M. Ebrahimzadeh, H. Karlsson, G. Arvidsson, and F. Laurell, *Continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled RbTiOAsO<sub>4</sub>*, Opt. Lett **23** (1998), 837–839.
- [ETD00] T. Edwards, G. Turnbull, M. Dunn, and M. Ebrahimzadeh, *Continuous-wave, singly-resonant, optical parametric oscillator based on periodically poled KTiOPO<sub>4</sub>*, Optics Express **6** (2000), no. 3, 58–63.
- [FBD06] N. Forget, S. Bahbah, C. Drag, F. Bretenaker, M. Lefèbvre, and E. Rosencher, *Actively mode-locked optical parametric oscillator*, Optics letters **31** (2006), no. 7, 972–974.
- [FDC92] M.S. Fee, K. Danzmann, and S. Chu, *Optical heterodyne measurement of pulsed lasers : toward high-precision pulsed spectroscopy*, Physical Review A **45** (1992), no. 7, 4911–4924.
- [FHL91] E.S. Fry, Q. Hu, and X. Li, *Single frequency operation of an injection-seeded Nd : YAG laser in high noise and vibration environments*, Applied Optics **30** (1991), no. 9, 1015–1017.
- [FJD98] A. Fiore, S. Janz, L. Delobel, P. Van der Meer, P. Bravetti, V. Berger, E. Rosencher, and J. Nagle, *Second-harmonic generation at  $\lambda = 1.6 \mu\text{m}$  in AlGaAs/AlO waveguides using birefringence phase matching*, Applied Physics Letters **72** (1998), 2942.
- [FMJ92] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, and R.L. Byer, *Quasi-phase-matched second harmonic generation : tuning and tolerances*, IEEE Journal of Quantum Electronics **28** (1992), no. 11, 2631–2654.
- [Fo05] N. Forget, *Des amplificateurs laser aux amplificateurs paramétriques : étude de l'amplification paramétrique à dérive de fréquence et du blocage de modes dans les oscillateurs paramétriques optiques*, Thèse, Université Paris-sud 11, 2005.
- [FW96] A. Fix and R. Wallenstein, *Spectral properties of pulsed nanosecond optical parametric oscillators : experimental investigation and numerical analysis*, Journal of the Optical Society of America B **13** (1996), no. 11, 2484–2497.
- [GCD95] G.M. Gale, M. Cavallari, T.J. Driscoll, and F. Hache, *Sub-20-fs tunable pulses in the visible from an 82-MHz optical parametric oscillator*, Optics Letters **20** (1995), no. 14, 1562–1564.
- [Gi62] J.A. Giordmaine, *Mixing of light beams in crystals*, Physical Review Letters **8** (1962), no. 1, 19–20.



- [GKW02] P. Gross, M.E. Klein, T. Walde, K.J. Boller, M. Auerbach, P. Wessels, and C. Fallnich, *Fiber-laser-pumped continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator*, *Optics letters* **27** (2002), no. 6, 418–420.
- [GLL10] P. Gross, I.D. Lindsay, C.J. Lee, M. Nittmann, T. Bauer, J. Bartschke, U. Warring, A. Fischer, A. Kellerbauer and K.J. Boller, *Frequency control of a 1163 nm singly resonant OPO based on MgO : PPLN*, *Optics letters* **35** (2002), no. 6, 820–822.
- [GLS68] J.E. Geusic, H.J. Levinstein, S. Singh, R.G. Smith, and L.G. Van Uitert, *Continuous 0.532- $\mu$  solid-state source using Ba<sub>2</sub>NaNb<sub>5</sub>O<sub>15</sub> (Barium-sodium niobate as nonlinear solid state source for secondary harmonic generation of green laser output from YAlG/Nd laser IR radiation)*, *Applied Physics Letters* **12** (1968), 306–308.
- [GM65] J.A. Giordmaine and R.C. Miller, *Tunable coherent parametric oscillation in LiNbO<sub>3</sub> at optical frequencies*, *Physical Review Letters* **14** (1965), 973–976.
- [GR72] T. Giallorenzi and M. Reilly, *Theory of internal upconversion and frequency doubling in optical parametric oscillators*, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **8** (1972), no. 3, 302–310.
- [Gu98] S. Guha, *Focusing dependence of the efficiency of a singly resonant optical parametric oscillator*, *Applied Physics B : Lasers and Optics* **66** (1998), no. 6, 663–675.
- [GWF82] S. Guha, F.J. Wu, and J. Falk, *The effects of focusing on parametric oscillation*, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **18** (1982), no. 5, 907–912.
- [Ha69] S.E. Harris, *Tunable optical parametric oscillators*, *Proceedings of the IEEE* **57** (1969), no. 12, 2096–2113.
- [Ha75] H. Haus, *A theory of forced mode locking*, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **11** (1975), no. 7 Part 1, 323–330.
- [Ha89] M.W. Hamilton, *An introduction to stabilized lasers*, *Contemporary Physics* **30** (1989), 21.
- [HB97] P.L. Hansen and P. Buchhave, *Thermal self-frequency locking of a doubly resonant optical parametric oscillator*, *Optics Letters* **22** (1997), no. 14, 1074–1076.
- [HDU07] S. Hannemann, E.J. van Duijn, and W. Ubachs, *A narrow-band injection-seeded pulsed titanium : sapphire oscillator-amplifier system with on-line chirp analysis for high-resolution spectroscopy*, *Review of Scientific Instruments* **78** (2007), 103102.

- [HLH82] J. Helmcke, SA Lee, and JL Hall, *Dye laser spectrometer for ultrahigh spectral resolution : design and performance*, Applied Optics **21** (1982), no. 9, 1686–1694.
- [HS06a] A. Henderson and R. Stafford, *Intra-cavity power effects in singly resonant cw OPOs*, Applied Physics B : Lasers and Optics **85** (2006), no. 2, 181–184.
- [HS06b] A. Henderson and R. Stafford, *Low threshold, singly-resonant CW OPO pumped by an all-fiber pump source*, Optics Express **14** (2006), no. 2, 767–772.
- [HS07] A. Henderson and R. Stafford, *Spectral broadening and stimulated Raman conversion in a continuous-wave optical parametric oscillator*, Optics letters **32** (2007), no. 10, 1281–1283.
- [JP75] P. Juncar and J. Pinard, *A new method for frequency calibration and control of a laser*, Optics communications **14** (1975), 438–441.
- [JWK07] B. Julsgaard, A. Walther, S. Kröll, and L. Rippe, *Understanding laser stabilization using spectral hole burning*, Optics Express **15** (2007), no. 18, 11444–11465.
- [KB85] T.J. Kane and R.L. Byer, *Monolithic, unidirectional single-mode Nd : YAG ring laser*, Optics letters **10** (1985), no. 2, 65–67.
- [KB90] G.J. Kintz and T. Baer, *Single-frequency operation in solid-state laser materials with short absorption depths*, IEEE Journal of Quantum Electronics **26** (1990), no. 9, 1457–1459.
- [KLM98] M.E. Klein, D.H. Lee, J.P. Meyn, B. Beier, K.J. Boller, and R. Wallenstein, *Diode-pumped continuous-wave widely tunable optical parametric oscillator based on periodically poled lithium tantalate*, Optics letters **23** (1998), no. 11, 831–833.
- [KLM99] M.E. Klein, D.H. Lee, J.P. Meyn, K.J. Boller, and R. Wallenstein, *Singly resonant continuous-wave optical parametric oscillator pumped by a diode laser*, Optics letters **24** (1999), no. 16, 1142–1144.
- [KMG08a] Khurgin, J.B. and Melkonian, J.M. and Godard, A. and Rosencher, E., *Passively mode-locked slow pump optical parametric oscillators*, Optics Letters **33** (2008), no. 2, 153–155.
- [KMG08b] Khurgin, J. and Melkonian, JM and Godard, A. and Lefebvre, M. and Rosencher, E., *Passive mode locking of optical parametric oscillators : an efficient technique for generating sub-picosecond pulses*, Optics Express **16** (2008), no. 7, 4804–4818.
- [Kr62] N.M. Kroll, *Parametric amplification in spatially extended media and application to the design of tuneable oscillators at optical frequencies*, Phys. Rev. **127** (1962), no. 4, 1207–1211.

- [Kr69] L.B. Kreuzer, *Single mode oscillation of a pulsed singly resonant optical parametric oscillator*, Applied Physics Letters **15** (1969), 263.
- [KRH04] M. Katz, R.K. Route, D.S. Hum, K.R. Parameswaran, G.D. Miller, and M.M. Fejer, *Vapor-transport equilibrated near-stoichiometric lithium tantalate for frequency-conversion applications*, Optics letters **29** (2004), no. 15, 1775–1777.
- [LSB96] M. Lefebvre, B. Scherrer, P. Bouchardy, and T. Pot, *Transient grating induced by single-shot time-domain coherent anti-Stokes Raman scattering : application to velocity measurements in supersonic flows*, Journal of the Optical Society of America B **13** (1996), no. 3, 514–520.
- [LW93] D. Lee and N.C. Wong, *Stabilization and tuning of a doubly resonant optical parametric oscillator*, Journal of the Optical Society of America B **10** (1993), no. 9, 1659–1667.
- [MBK02] R.O. Moore, G. Biondini and W.L. Kath, *Self-induced thermal effects and modal competition in continuous-wave optical parametric oscillators*, Journal of the Optical Society of America B **19** (2002), no. 4, 802–811.
- [MDB08] T.H. My, C. Drag, and F. Bretenaker, *Single-frequency and tunable operation of a continuous intracavity-frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator*, Optics Letters **33** (2008), no. 13, 1455–1457.
- [MDS08] E. Mimoun, L. De Sarlo, J.J. Zondy, J. Dalibard, and F. Gerbier, *Sum-frequency generation of 589 nm light with near-unit efficiency*, Optics Express **16** (2008), no. 23, 18684–18691.
- [Me07] J.M. Melkonian, *Façonnage des propriétés spectrales et temporelles de sources optiques infrarouges par mélange non-linéaire à trois ondes*, Thèse, Université Paris-Sud 11, 2007.
- [MEF95] L.E. Myers, R.C. Eckardt, M.M. Fejer, R.L. Byer, W.R. Bosenberg, and J.W. Pierce, *Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO<sub>3</sub>*, Journal of the Optical Society of America B **12** (1995), no. 11, 2102–2116.
- [MFB07] J.M. Melkonian, N. Forget, F. Bretenaker, C. Drag, M. Lefebvre, and E. Rosencher, *Active mode locking of continuous-wave doubly and singly resonant optical parametric oscillators*, Optics letters **32** (2007), no. 12, 1701–1703.
- [MGE94] Melikechi, N. and Gangopadhyay, S. and Eyler, E.E., *Phase dynamics in nanosecond pulsed dye laser amplification*, Journal of the Optical Society of America B **11** (1994), no. 12, 2402–2411.

- [MKC95] G.T. Moore, K. Koch, and E.C. Cheung, *Optical parametric oscillation with intracavity second-harmonic generation*, Optics Communications **113** (1995), no. 4, 463–470.
- [MMB07] J.M. Melkonian, T.H. My, F. Bretenaker, and C. Drag, *High spectral purity and tunable operation of a continuous singly resonant optical parametric oscillator emitting in the red*, Optics Letters **32** (2007), no. 5, 518–520.
- [MMP10] Mhibik, O. and My, T.H. and Paboeuf, D. and Bretenaker, F. and Drag, C., *Frequency stabilization at the kilohertz level of a continuous intracavity frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator*, Optics Letters **35** (2010), no. 14, 2364–2366.
- [MRM09] T.H. My, O. Robin, O. Mhibik, C. Drag, and F. Bretenaker, *Stimulated Raman scattering in an optical parametric oscillator based on periodically poled MgO-doped stoichiometric LiTaO<sub>3</sub>*, Optics Express **17** (2009), no. 7, 5912–5918.
- [My10] T.-H. My, *Etude et réalisation de sources lasers visibles à grande longueur de cohérence pour la manipulation cohérente d'ions de terre rare*, Thèse, Université Paris-Sud 11, 2010.
- [NON09] T. Nishikawa, A. Ozawa, Y. Nishida, M. Asobe, F.L. Hong, and T.W. H "ansch, *Efficient 494 mW sum-frequency generation of sodium resonance radiation at 589 nm by using a periodically poled Zn : LiNbO<sub>3</sub> ridge waveguide*, Optics Express **17** (2009), no. 20, 17792–17800.
- [OZ06] A.V. Okishev and J.D. Zuegel, *Intracavity-pumped Raman laser action in a mid IR, continuous-wave (cw) MgO : PPLN optical parametric oscillator*, Optics Express **14** (2006), no. 25, 12169–12173.
- [PCA76] A.F. Penna, A. Chaves, P.R. Andrade, and S.P.S. Porto, *Light scattering by lithium tantalate at room temperature*, Physical Review B **13** (1976), no. 11, 4907–4917.
- [PCB01] T. Petelski, R.S. Conroy, K. Bencheikh, J. Mlynek, and S. Schiller, *All-solid-state, tunable, single-frequency source of yellow light for high-resolution spectroscopy*, Optics Letters **26** (2001), no. 13, 1013–1015.
- [PKB98] P.E. Powers, T.J. Kulp, and S.E. Bisson, *Continuous tuning of a continuous-wave periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator by use of a fan-out grating design*, Optics letters **23** (1998), no. 3, 159–161.
- [PSU88] A. Piskarskas, V. Smil'gyavichyus, and A. Umbrasas, *Continuous parametric generation of picosecond light pulses*, Quantum Electronics **18** (1988), no. 2, 155–156.

- [PY72] J. Pinard and JF Young, *Interferometric stabilization of an optical parametric oscillator*, Optics Communications **4** (1972), 425–427.
- [Ra85] L.A. Rahn, *Feedback stabilization of an injection-seeded Nd : YAG laser*, Applied Optics **24** (1985), no. 7, 940–942.
- [RDL02] I. Ribet, C. Drag, M. Lefebvre, and E. Rosencher, *Widely tunable single-frequency pulsed optical parametric oscillator*, Optics letters **27** (2002), no. 4, 255–257.
- [RF02] E. Rosencher and C. Fabre, *Oscillation characteristics of continuous-wave optical parametric oscillators : beyond the mean-field approximation*, Journal of the Optical Society of America B **19** (2002), no. 5, 1107–1116.
- [Ri06] F. Riehle, *Frequency standards : basics and applications*, Wiley-Vch, 2006.
- [RSG09] M. Raybaut, T. Schmid, A. Godard, A.K. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, P. Flamant, A. Bohman, P. Geiser, and P. Kaspersen, *High-energy single-longitudinal mode nearly diffraction-limited optical parametric source with 3 MHz frequency stability for CO<sub>2</sub> DIAL*, Optics Letters **34** (2009), no. 13, 2069–2071.
- [SAR95] A.V. Smith, W.J. Alford, T.D. Raymond, and M.S. Bowers, *Comparison of a numerical model with measured performance of a seeded, nanosecond KTP optical parametric oscillator*, Journal of the Optical Society of America B **12** (1995), no. 11, 2253–2267.
- [SBK09] R. Sowade, I. Breunig, J. Kiessling, and K. Buse, *Influence of the pump threshold on the single-frequency output power of singly resonant optical parametric oscillators*, Applied Physics B : Lasers and Optics **96** (2009), no. 1, 25–28.
- [SFE07] G.K. Samanta, G.R. Fayaz, and M. Ebrahim-Zadeh, *1.59 W, single-frequency, continuous-wave optical parametric oscillator based on MgO : sPPLT*, Optics Letters **32** (2007), no. 17, 2623–2625.
- [SFS07] G.K. Samanta, G.R. Fayaz, Z. Sun, and M. Ebrahim-Zadeh, *High-power, continuous-wave, singly resonant optical parametric oscillator based on MgO : sPPLT*, Optics letters **32** (2007), no. 4, 400–402.
- [SGB99] A.V. Smith, R.J. Gehr, and M.S. Bowers, *Numerical models of broadband nanosecond optical parametric oscillators*, Journal of the Optical Society of America B **16** (1999), no. 4, 609–619.
- [Sh84] Y.R. Shen, *The principles of nonlinear optics*, Wiley, 1984.
- [SHH88] C. Salomon, D. Hils, and JL Hall, *Laser stabilization at the millihertz level*, Journal of the Optical Society of America B **5** (1988), no. 8, 1576–1587.

- [Si86] A.E. Siegman, *Lasers*, University Science, Mill Valley, Calif (1986)
- [SK72] A. Siegman and D. Kuizenga, *Laser mode locking using intracavity modulators*, IEEE Journal of Quantum Electronics **8** (1972), no. 6, 601–601.
- [SKS97] K. Schneider, P. Kramper, S. Schiller, and J. Mlynek, *Toward an optical synthesizer : a single-frequency parametric oscillator using periodically poled LiNbO<sub>3</sub>*, Optics letters **22** (1997), no. 17, 1293–1295.
- [SMH06] H. Stoehr, F. Mensing, J. Helmcke, and U. Sterr, *Diode laser with 1 Hz linewidth*, Optics letters **31** (2006), no. 6, 736–738.
- [SMW02] U. Ströβner, J.P. Meyn, R. Wallenstein, P. Urenski, A. Arie, G. Rosenman, J. Mlynek, S. Schiller, and A. Peters, *Single-frequency continuous-wave optical parametric oscillator system with an ultrawide tuning range of 550 to 2830 nm*, Journal of the Optical Society of America B **19** (2002), no. 6, 1419–1424.
- [SRG00] B. Scherrer, I. Ribet, A. Godard, E. Rosencher, and M. Lefebvre, *Dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillators : demonstration of pulsed single-mode operation*, Journal of the Optical Society of America B **17** (2000), no. 10, 1716–1729.
- [St07] U. Ströβner, *Development of Optical Synthesizers*, Thèse, Universität Konstanz, 2001.
- [SVH10] Siltanen, M. and Vainio, M. and Halonen, L., *Pump-tunable continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator from 2.5 to 4.4 μm*, Optics Express **18** (2010), no. 13, 14087–14092.
- [TKG05] S.Y. Tu, AH Kung, ZD Gao, and SN Zhu, *Efficient periodically poled stoichiometric lithium tantalate optical parametric oscillator for the visible to near-infrared region*, Optics letters **30** (2005), no. 18, 2451–2453.
- [UBW00] R. Urschel, A. Borsutzky, and R. Wallenstein, *Numerical analysis of the spatial behaviour of nanosecond optical parametric oscillators of beta-barium borate*, Applied Physics B : Lasers and Optics **70** (2000), no. 2, 203–210.
- [UFW95] R. Urschel, A. Fix, R. Wallenstein, D. Rytz, and B. Zysset, *Generation of tunable narrow-band midinfrared radiation in a type I potassium niobate optical parametric oscillator*, Journal of the Optical Society of America B **12** (1995), no. 4, 726–730.
- [VED97] M. Vaidyanathan, R. Eckardt, V. Dominic, L. Myers, and T. Grayson, *Cascaded optical parametric oscillations*, Optics Express **1** (1997), no. 2, 49–53.
- [VHB03] M. Van Herpen, SE Bisson, and FJM Harren, *Continuous-wave operation of a single-frequency optical parametric oscillator at 4–5 μm based on periodically poled LiNbO<sub>3</sub>*, Optics letters **28** (2003), no. 24, 2497–2499.

- [VPP09] M. Vainio, J. Peltola, S. Persijn, F.J.M. Harren, and L. Halonen, *Thermal effects in singly resonant continuous-wave optical parametric oscillators*, Applied Physics B : Lasers and Optics **94** (2009), no. 3, 411–427.
- [VSH10] Vainio, M. and Siltanen, M. and Hieta, T. and Halonen, L., *Continuous-wave optical parametric oscillator based on a Bragg grating*, Optics Letters **35** (2010), no. 10, 1527–1529.
- [VSP09] M. Vainio, M. Siltanen, J. Peltola, and L. Halonen, *Continuous-wave optical parametric oscillator tuned by a diffraction grating*, Optics Express **17** (2009), no. 9, 7702–7707.
- [VZK90] W. Vassen, C. Zimmermann, R. Kallenbach, and T.W. Haensch, *A frequency-stabilized titanium sapphire laser for high-resolution spectroscopy*, Optics Communications **75** (1990), 435–440.
- [WET90] E.S. Wachman, D.C. Edelstein, and C.L. Tang, *Continuous-wave mode-locked and dispersion-compensated femtosecond optical parametric oscillator*, Optics Letters **15** (1990), no. 2, 136.
- [WHO04] R.T. White, Y. He, B.J. Orr, M. Kono, and K.G.H. Baldwin, *Control of frequency chirp in nanosecond-pulsed laser spectroscopy. 1. Optical-heterodyne chirp analysis techniques*, Journal of the Optical Society of America B **21** (2004), no. 9, 1577–1585.
- [WRH93] D.E. Withers, G. Robertson, A.J. Henderson, Y. Tang, Y. Cui, W. Sibbett, B.D. Sinclair, and M.H. Dunn, *Comparison of lithium triborate and  $\beta$ -barium borate as nonlinear media for optical parametric oscillators*, Journal of the Optical Society of America B **10** (1993), no. 9, 1737–1743.
- [YBM00] A.P. Yalin, P.F. Barker, and R.B. Miles, *Characterization of laser seeding by use of group-velocity dispersion in an atomic-vapor filter*, Optics Letters **25** (2000), no. 7, 502–504.
- [YCI99] B.C. Young, F.C. Cruz, W.M. Itano, and J.C. Bergquist, *Visible lasers with subhertz linewidths*, Physical Review Letters **82** (1999), no. 19, 3799–3802.
- [YEB93a] S.T. Yang, R.C. Eckardt, and R.L. Byer, *Continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator pumped by a single-frequency resonantly doubled Nd : YAG laser*, Optics Letters **18** (1993), no. 12, 971–973.
- [YEB93b] S.T. Yang, R.C. Eckardt, and R.L. Byer, *Power and spectral characteristics of continuous-wave parametric oscillators : the doubly to singly resonant transition*, Journal of the Optical Society of America B **10** (1993), no. 9, 1684–1695.
- [YKN04] N.E. Yu, S. Kurimura, Y. Nomura, M. Nakamura, K. Kitamura, Y. Takada, J. Sakuma, and T. Sumiyoshi, *Efficient optical parametric oscillation based*

- on periodically poled 1.0 mol% MgO-doped stoichiometric LiTaO*, Applied Physics Letters **85** (2004), 5134.
- [YZL09] Yang, S. and Zhou, Y. and Li, J. and Wong, K.K.Y., *Actively Mode-Locked Fiber Optical Parametric Oscillator*, IEEE Journal Of Selected Topics In Quantum Electronics **15** (2009), no. 2, 393.
- [ZLB10] Zaske, S. and Lee, D.H. and Becher, C., *Efficient optical parametric oscillation based on periodically poled 1.0 mol% MgO-doped stoichiometric LiTaO*, Applied Physics B : Lasers and Optics **98** (2010), 729–735.



---

## Deuxième partie

# Microscopie de photodétachement de 2<sup>nde</sup> génération

## Sommaire

---

<b>4</b>	<b>Ions négatifs et photodétachement</b>	<b>84</b>
4.1	Les ions négatifs . . . . .	84
4.1.1	Propriétés générales . . . . .	84
4.1.2	Éléments historiques et articles de revue . . . . .	86
4.1.3	Quelques applications des ions négatifs . . . . .	87
4.2	Photodétachement . . . . .	88
4.2.1	Section efficace de photodétachement . . . . .	88
4.2.2	Méthodes expérimentales . . . . .	93
4.3	Photodétachement en champ électrique . . . . .	94
<b>5</b>	<b>La microscopie de photodétachement</b>	<b>96</b>
5.1	Problématique : un interféromètre à deux ondes obtenu par chute libre	97
5.2	Courant électronique créé par une source ponctuelle libre . . . . .	97
5.2.1	Grandeurs caractéristiques et expression de la densité de courant	97
5.2.2	Commentaires sur l'expression de la distribution spatiale de courant . . . . .	99
5.3	L'approche semi-classique . . . . .	101
5.3.1	Résolution semi-classique du problème de la chute libre . . . . .	102
5.3.2	Formule de Hamilton-Jacobi - cas à 1 dimension . . . . .	103
5.3.3	Applications de la description semi-classique. Notion d'orbite fermée . . . . .	103
<b>6</b>	<b>L'expérience</b>	<b>104</b>
6.1	Le jet d'ions négatifs . . . . .	105
6.1.1	Les sources d'ions . . . . .	105
6.1.2	La source SNICS II et son adaptation à notre installation . . . . .	106
6.1.3	La conduite du jet d'ions . . . . .	107
6.2	Les lasers . . . . .	108
6.3	L'observation des interférogrammes . . . . .	109
6.3.1	La colonne de champ électrique . . . . .	109
6.3.2	La détection . . . . .	111

---

6.3.3	Géométrie de l'interaction jet-laser, les flous . . . . .	112
<b>7</b>	<b>Spectroscopie des ions négatifs</b>	<b>113</b>
7.1	Une spectroscopie électronique précise à quelques mk près . . . . .	114
7.1.1	État de l'art en 2001 . . . . .	114
7.1.2	Interpolation du champ électrique . . . . .	116
7.1.3	Synthèse des mesures d'affinités électroniques . . . . .	117
7.2	Microscopie de photodétachement à deux couleurs . . . . .	117
7.3	Structure fine - Décalage isotopique d'affinités électroniques . . . . .	119
7.4	Microscopie de photodétachement moléculaire . . . . .	122
<b>8</b>	<b>Microscopie de photodétachement en champ magnétique</b>	<b>124</b>
8.1	Photodétachement en champ magnétique (et éventuellement en champ électrique) . . . . .	124
8.1.1	Variation de la section efficace de photodétachement . . . . .	124
8.1.2	Un pas vers notre expérience : la répartition spatiale des photoélectrons en champs électrique et magnétique parallèles . . . . .	125
8.2	Expériences en champ magnétique transverse tel que $\Delta T < T < T_k$ , typiquement $ \vec{B}  \approx 1 \mu \text{ T}$ . . . . .	126
8.3	Expériences en champ magnétique longitudinal tel que $\Delta T < T_k \approx T$ , typiquement $ \vec{B}  \approx 100 \mu \text{ T}$ . . . . .	128
<b>9</b>	<b>Photodétachement en régime impulsif</b>	<b>130</b>
9.1	Montage expérimental . . . . .	130
9.2	Affinité électronique de l'iode . . . . .	131
9.3	Effet pondéromoteur . . . . .	131
<b>10</b>	<b>Perspectives : Microscopie de photodétachement vers de nouveaux états</b>	<b>133</b>
10.1	La microscopie de photodétachement produisant un électron de moment cinétique orbital non nul . . . . .	134
10.2	Photodétachement en laissant l'atome dans un état excité : perspectives sur les alcalins et exemple de P . . . . .	135
	<b>Références</b>	<b>137</b>

---

La microscopie de photodétachement a été inventée suite aux expériences de photodétachement et de photoïonisation en champ électrique. En présence d'un tel champ, la section efficace de détachement est modulée autour de la loi prédite par Wigner. Après les travaux théoriques de Fabrikant, Demkov, Kondratovich et Ostovski du début des années 80, ces oscillations ont clairement été interprétées comme une propriété ondulatoire des électrons. L'onde électronique en champ électrique se divise en deux parties dont l'une est réfléchiée par le champ. Les deux demi-ondes interfèrent tant que l'onde électronique est suffisamment cohérente.

Le photodétachement d'ion négatif par laser permet de créer une telle source électronique. Lorsque l'électron quitte l'ion, il peut être considéré comme libre ; l'interaction avec l'atome neutre est négligeable. En présence d'un champ électrique uniforme extérieur, son mouvement d'accélération est analogue à un mouvement de chute libre. La coexistence de deux chemins possibles vers le détecteur produit un système d'anneaux d'interférence que l'on peut directement observer. L'observation du système d'interférences électroniques donne, du point de vue quantique, une vue directe du carré du module de la fonction d'onde transverse d'un électron atomique, avec un agrandissement de l'image qui peut atteindre trois ordres de grandeur pour seulement 0,5 m de vol dans un champ électrique uniforme. C'est le principe de la « microscopie de photodétachement ». La compréhension, l'amélioration et l'optimisation de cet interféromètre constitue un sujet de recherche déjà très riche en soi.

Un autre volet du travail expérimental sur cette machine, est la possibilité qu'offre le microscope de photodétachement de mesurer les affinités électroniques avec une grande précision, de l'ordre de quelques  $\text{mk}^8$ . Nos mesures, notamment sur le soufre, font de cette expérience la plus précise pour la détermination d'affinités électroniques. A plus long terme, nous espérons aussi avec cet instrument observer directement des propriétés atomiques comme par exemple des effets liés à la présence du coeur résiduel.

J'ai débuté mon travail de recherche auprès de C. Blondel et C. Delsart en 2002. A cette époque, le microscope était opératoire grâce aux travaux de thèse de F. Dulieu [Du96]. La possibilité de mesurer des affinités précisément a été ensuite démontrée par C. Valli [Va99]. Mon arrivée coïncida avec la dernière année de thèse de F. Goldfarb où le microscope était appliqué aux molécules [Go03]. J'ai ensuite travaillé au côté de W. Chaïbi durant 3 années, où entre autres choses, il a fait avancer de manière décisive la problématique de la microscopie de photodétachement en champ magnétique [Ch06]. Nous avons aussi bénéficié à cette époque de la grande expérience sur les ions de S. Kröger (surtout ceux ayant une structure hyperfine des plus complexes).

Dans ce manuscrit, j'explique de quelle façon nous avons fait évoluer cet instrument vers un microscope dit de 2<sup>ème</sup> génération. Pour cela je rappelle dans une première

---

8.  $1 \text{ mk} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$

---

partie les propriétés singulières des ions négatifs et de la réaction de photodétachement. J'expose ensuite les aspects théoriques relatifs à la microscopie de photodétachement telle que la distribution spatiale attendue des électrons sur le détecteur. Ensuite, je décris sommairement le montage expérimental et les évolutions les plus importantes de ces dernières années.

La description des résultats fait l'objet de plusieurs paragraphes. Le microscope nous permet de mesurer de nombreux paramètres spectroscopiques des atomes ou des molécules : en premier lieu l'affinité électronique, les niveaux d'énergie d'états internes (structure fine ou hyperfine pour les atomes, la rotation pour les molécules). Je détaille aussi quelques développements instrumentaux visant à améliorer la précision de ces mesures comme le photodétachement à deux couleurs.

J'aborde ensuite la présentation des expériences effectuées avec le microscope de photodétachement en présence d'un champ magnétique. Nous avons étudié différentes configurations (transverse et longitudinale par rapport au champ électrique) avec des champs allant du  $\mu\text{T}$  à la centaine de  $\mu\text{T}$ . Nous avons démontré l'invariance des interférogrammes dans de tels champs tout comme l'insensibilité des mesures d'affinités électroniques. Je discute des aspects théoriques de la microscopie de photodétachement en champ magnétique et donne aussi les grandes lignes d'un nouveau projet dont le but est d'étudier les variations de sections efficaces de photodétachement en champ magnétique pur.

Enfin, je termine la description de nos travaux en abordant les expériences de photodétachement en régime pulsé : je discute l'intérêt d'une telle méthode, sa mise en oeuvre, la détermination de l'affinité électronique de l'iode et la mise en évidence d'effets pondéromoteurs. Cet effet est lié à l'énergie cinétique d'agitation que l'électron peut acquérir rapidement sous l'effet du champ électrique oscillant, qui est intense au foyer d'un faisceau laser pulsé. L'avancée de ce travail a bénéficié de la présence d'un chercheur post-doctorant espagnol, R. Pelàez.

Dans une partie plus prospective, je montre aussi l'intérêt d'utiliser le microscope de photodétachement au voisinage de seuils atomiques excités et je présente des résultats préliminaires obtenus sur P. La production de cet ion a été rendue possible par la mise en service d'une nouvelle source d'ions négatifs à spallation avec du césium. La production d'états photodétachés vers des seuils excités nous laisse espérer de mettre en évidence des effets de rediffusion par le coeur atomique.

## 4 Ions négatifs et photodétachement

### 4.1 Les ions négatifs

#### 4.1.1 Propriétés générales

En électrostatique, il est bien connu qu'une particule chargée comme l'électron ne subit pas la force coulombienne en présence d'une particule neutre. De manière intuitive, l'existence d'ions négatifs formés d'un électron attaché à un atome apparaît étonnante. Malgré tout, on peut comprendre quelle force est responsable de la liaison entre l'atome et l'électron dans un modèle semi-classique. Lorsqu'il est proche du nuage électronique atomique, l'électron excédentaire polarise l'atome ce qui engendre un moment dipolaire électrique. Ce moment dipolaire électrique induit peut à son tour exercer une force d'attraction sur l'électron, qui se trouve piégé par le potentiel créé. Un ion négatif stable se forme et l'énergie gagnée dans ce processus, notée  ${}^eA$ , est appelée l'énergie de liaison de l'ion ou l'*affinité électronique* de l'atome.

$${}^eA = E(A) - E(A^-) \quad (22)$$

Contrairement à l'interaction coulombienne dominante dans la liaison atomique, l'électron externe de l'ion négatif subit un potentiel de courte portée, en  $1/r^4$ . Cette distinction entre les variations des potentiels d'interaction donne lieu à de grandes différences entre les propriétés des atomes et des ions négatifs. L'affinité électronique est en général d'un ordre de grandeur plus faible que l'énergie d'ionisation de l'atome correspondant (0.75 eV et 13.6 eV pour l'hydrogène). La structure de l'ion négatif est très simple, comportant un nombre peu élevé de niveaux, qui sont dans la majorité des cas des niveaux de structure fine ou éventuellement hyperfine d'un seul terme spectral. A l'opposé, l'interaction coulombienne donne lieu à une infinité d'états liés qui convergent sous forme de séries de Rydberg jusqu'à la limite d'ionisation. Comme nous le verrons par la suite, les propriétés de détachement de l'électron par rayonnement lumineux sont aussi radicalement différentes pour l'atome (photoionisation) et l'ion (photodétachement). Malgré l'édifice fragile que constitue l'ion négatif, environ 80% des éléments du tableau périodique (hormis les lanthanides et actinides) peuvent former un ion stable dans l'état fondamental. Comme on peut s'y attendre, les gaz rares, dont la couche électronique externe est complète, ne peuvent lier d'électron supplémentaire. De manière moins intuitive, l'azote, le béryllium, le magnésium, le manganèse et les éléments de la colonne du zinc (IIB) n'existent pas non plus sous la forme d'anions stables. Enfin notons que les halogènes, auxquels il ne manque qu'un seul électron pour avoir une couche complète, présentent les énergies de liaison les plus importantes.

Seuls quelques ions possèdent un état excité [And04], mais en général appartenant au même multiplet de structure fine que le fondamental. Ces états de même configuration

électronique ont donc une même parité, ce qui exclut l'existence de transitions optiques entre eux. Un cas singulier est celui de l'osmium qui présente justement un état électronique excité de parité différente. La transition optique (i.e. dipolaire électrique) de cet ion a été récemment observée [BH00] et depuis, des expériences de spectroscopie ont permis de la caractériser (position précise de la résonance, mesure de la section efficace et caractérisation des états hyperfins) [WAC09,FCW10]. Ces recherches sont stimulées par l'idée d'ouvrir la voie du refroidissement par laser d'ions négatifs confinés dans un piège. Des calculs sont aussi menés pour trouver d'autres candidats (comme le lanthane) qui auraient les même propriétés [OMB10].

Le calcul des énergies de liaison constitue un véritable défi pour les théoriciens. En effet, il est nécessaire de connaître très précisément l'énergie totale électronique pour obtenir une valeur juste de l'affinité. Par exemple dans le cas des ions négatifs de terres rares, l'énergie de liaison est de l'ordre de la dizaine de meV soit  $10^{-7}$  de cette énergie totale.

En deux mots, le calcul quantique des énergies est très similaire à celui des atomes. On se place dans l'approximation du champ central qui est un modèle de particules indépendantes. Dans cette approximation, les électrons sont supposés se mouvoir indépendamment les uns des autres dans un potentiel sphérique créé par le noyau et la position moyenne des autres électrons. L'énergie cinétique électronique et le potentiel moyen constituent le terme principal du hamiltonien. On réduit ainsi le problème à  $N$  électrons en une somme d'équations à un électron où chaque hamiltonien monoélectronique dépend des  $N$  fonctions d'onde électronique. Il s'agit d'un problème auto-cohérent, qui peut se résoudre par la méthode itérative de Hartree-Fock. Les deux termes suivants du hamiltonien représentent l'écart à l'approximation du champ central qui prend en compte la répulsion entre les électrons et l'interaction spin-orbite. Leur importance relative permet de choisir les bons nombres quantiques du problème (couplage LS et couplage jj). Malgré tout, ces méthodes appliquées aux ions négatifs donnent une estimation assez mauvaise de l'énergie de liaison, même pour un système aussi simple que  $H^-$  [We61,SWL96]. Il est nécessaire de prendre en compte les corrélations entre les électrons qui sont négligées dans l'approximation de champ moyen. En d'autres termes, l'électron ajouté à la couche externe entraîne un changement de mouvement de tous les autres afin de minimiser le recouvrement des fonctions d'onde, ceci en raison de la répulsion électrostatique (corrélacion de type coulombien) et du principe d'exclusion de Pauli (corrélacion de type échange). Au final, tout le système gagne assez d'énergie potentielle pour être stable et la liaison de l'électron excédentaire s'explique par la prise en compte des effets de corrélation électronique.

Pour valider ces modèles, il est important de comparer le résultat des calculs aux mesures expérimentales. A titre d'exemple, la détermination de l'affinité électronique du calcium a donné lieu à des discussions pendant une dizaine d'années. L'ion négatif

de cet élément, que l'on croyait instable tout comme le Be et le Mg, a été observé en 1987 [PTC87]. Malgré tout, de nouvelles expériences et de nouveaux calculs ont été nécessaires pour finalement établir une affinité électronique de 0,02455 eV [PAB96], désormais bien connue [SWL96].

#### 4.1.2 Éléments historiques et articles de revue

Dix ans après la découverte de l'électron, Sir J.J. Thomson montra l'existence en 1907 des ions négatifs<sup>9</sup>. Les premiers travaux sur ces ions apparaissent à la fin des années 30 pour des raisons d'intérêt astrophysique. Wildt interpréta l'absorption dans l'infrarouge dans le spectre du soleil par la présence de l'ion négatif d'hydrogène [Wi41]. Cette interprétation reposait sur une estimation de son affinité électronique. Différentes techniques de production d'ions se développèrent et permirent la production en 1953 de jets d'hydrogène et d'oxygène négatifs relativement intenses, de l'ordre de 100 pA [Fi53]. La première expérience de photodétachement [BF54] eut lieu la même année et deux ans plus tard Branscomb et Smith mesurèrent la section efficace de détachement de  $H^-$  [BS55]. Le photodétachement par laser débuta en 1965 en régime pulsé sur  $I^-$  [HRB65] et en 1967 en régime continu avec  $He^-$  [BGH67]. Les premiers spectres à haute résolution furent enregistrés en utilisant un laser impulsionnel à colorants accordable en 1970 avec  $S^-$  [LW70].

Depuis les années 40, Massey a publié différentes éditions successives d'un ouvrage exhaustif sur les ions négatifs [Ma96]. Par ailleurs, depuis 1975, les affinités électroniques ainsi que quelques valeurs de structure interne sont référencées dans un article de revue. Hotop et Lineberger en écrivirent les deux premières versions, en 1975 [HL75] et en 1985 [HL85]. La version la plus récente, publiée en 1999, est de Andersen, Haugen et Hotop [AHH99]. J'ai récemment remis à jour ces données sur le site Wikipédia pour les 84 premiers éléments du tableau périodique, faisant apparaître une douzaine de nouvelles références<sup>10</sup>.

D'autre part, des articles de revue récents permettent d'avoir une idée très complète des développements expérimentaux et théoriques sur les ions négatifs. En 1994, Buckman et Clark ont décrit les phénomènes de résonances observés dans ces ions [BC94]. Un an plus tard, Blondel [Bl95] a présenté les nouveaux résultats du domaine, en particulier sur  $He^-$ , les alcalino-terreux et les éléments de la colonne du  $C^-$ . Cet article est aussi consacré au photodétachement multiphotonique. Plus récemment, en 2004, T. Andersen [And04] et D.J. Pegg [Pe04] ont passé en revue l'état de l'art sur la structure, la dynamique et les processus collisionnels dans les ions négatifs. De nos jours, les

9. D'après la référence Philos. Mag. **13**,56 (1907).

10. <http://fr.wikipedia.org/wiki/Affinitéélectronique> et [http://en.wikipedia.org/wiki/Electron-affinity-\(data-page\)](http://en.wikipedia.org/wiki/Electron-affinity-(data-page)).

expériences sur les ions négatifs peuvent avoir recours aux grands instruments, comme les anneaux de stockage que sont Cryring (Stockholm) et Astrid (Aarhus) et datant des années 1990.

### 4.1.3 Quelques applications des ions négatifs

Outre leur intérêt pour l'étude des lois fondamentales en physique atomique, les ions négatifs interviennent dans de nombreuses branches de la physique, allant de l'astrophysique à la physique des plasmas, la physique des surfaces et au domaine des accélérateurs. Je détaille ici deux exemples d'applications qui sont en lien assez direct avec les recherches menées dans notre équipe.

Les ions négatifs doivent jouer un rôle important dans la réalisation des futures générations de réacteurs de fusion. La fusion doit être réalisée dans un plasma confiné dans un tokamak qui est constitué d'une enceinte torique dans laquelle est produit un champ magnétique intense. Afin d'atteindre les températures requises pour la fusion, le chauffage du plasma est obtenu par l'injection de particules neutres de grande énergie (1 MeV). Les faisceaux de neutres à haute énergie actuels résultent de réactions d'épluchage sur cible gazeuse ( $D_2$ ) des  $D^-$  accélérés à 1 MeV. Ce procédé de neutralisation conceptuellement très simple génère cependant une foule de particules parasites entraînant des instabilités de faisceaux, d'importantes charges thermiques sur les composants de la ligne d'injection, et au final, une faible efficacité d'ensemble (rendement global de l'injecteur  $< 30\%$ ). L'expérience ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) consiste à réaliser un tokamak de grande dimension pour étudier la possibilité de la production d'énergie par fusion nucléaire. Pour cette installation, le jet d'ions négatifs requis est de 40 A. Une voie explorée pour la neutralisation du faisceau est le photodétachement par laser. Dans ce cadre, nous avons initié une collaboration avec le CEA et le laboratoire Artemis (UMR6162). L'expérience de faisabilité que nous avons proposée consiste en la neutralisation quasi-totale d'un faisceau de  $H^-$  de quelques  $\mu A$  grâce à l'utilisation d'un laser continu (10 W) et d'une cavité de haute finesse ( $F \approx 1000$ ). Cette technique présenterait de multiples avantages, comme une réduction de 80% du gaz injecté et des particules parasites associées, une potentialité de photo-neutralisation élevée et conduirait à un rendement global de l'injecteur proche de 80%.

Lors de la mise en place de notre nouvelle source d'ions négatifs (cf. la partie 6.1.2), nous avons à plusieurs reprises visité le « Laboratoire de Mesure du Carbone 14 » du CEA de Saclay dirigé par E. Cottureau puis par C. Moreau. Ces chercheurs nous ont sympathiquement ouvert les portes de leur installation et donné de nombreuses informations sur ces sources. Leur expérience illustre une autre application importante des ions négatifs, la spectrométrie de masse accélérée (AMS pour « Accelerator mass spectrometry »). Dans un tel spectromètre, les ions négatifs préalablement sélectionnés en masse



entrent dans un « Tandem accelerator ». Dans ce tube, les charges négatives subissent une accélération de l'ordre du mégavolt. A mi-chemin, les ions sont multi-ionisés, puis les charges cette fois positives sont à nouveau accélérées vers la sortie à partir du centre très répulsif. Les ions quittent l'accélérateur avec une vitesse de quelques pour cent de celle de la lumière et sont analysés en masse sous cette formidable énergie cinétique. Ces spectromètres ont de nombreuses applications en physique nucléaire et, en particulier, ils peuvent être utilisés pour la datation au carbone 14, développée par Libby (prix Nobel de chimie en 1960) et ses collaborateurs [ALW47]. L'utilisation d'un AMS permet la détection précise du nombre d'atomes de  $^{14}\text{C}$ , un ratio de  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  de  $10^{-15}$  peut être compté, ce qui permet de dater des échantillons rapidement et avec une grande fiabilité, beaucoup plus que par la mesure de l'activité spécifique du radiocarbone.

## 4.2 Photodétachement

Lors du photodétachement d'ion négatif, un photon d'énergie  $h\nu$  suffisante peut détacher l'électron  $e^-$  de l'ion négatif  $A^-$  suivant la réaction :



où  $\epsilon$  est l'énergie de l'électron au dessus du seuil, égale à  $(h\nu - eA)$  et  $l$  son moment cinétique orbital. Cette réaction est un processus très étudié expérimentalement pour avoir des informations sur la structure des ions négatifs. La section efficace associée correspond à la probabilité de photodétachement. Chaque ion présente une valeur de section efficace différente mais certaines propriétés sont très générales et se retrouvent pour chaque élément. La section croît à partir du seuil, atteint un maximum puis finit par décroître. A faible énergie  $\epsilon$ , la variation de section efficace est régie par la loi de seuil établie par Wigner en 1948. Notons que cette réaction produit un nombre d'états limités en raison de la conservation de la parité et de celle du moment angulaire total.

### 4.2.1 Section efficace de photodétachement

#### a) Loi de Wigner

La section efficace permet de relier la probabilité de détachement par unité de temps au flux de photons et de particules. Cette grandeur est très utile car elle est indépendante des conditions expérimentales. Pour un phénomène à  $n$  photons, la probabilité d'ordre  $n$  de détachement par unité de temps, notée  $\Gamma_n$ , est donnée par :

$$\Gamma_n = \sigma_n(\nu) \times (\Phi)^n \quad (24)$$

où  $\Phi$  est le flux de photons par unité de temps et de surface. Au cours de nos expériences nous nous sommes limités au processus à 1 photon. L'excitation est engendrée par un

laser d'énergie suffisamment faible pour traiter le champ de manière perturbative. Dans ces conditions, on applique la *règle d'or de Fermi* qui permet de calculer la probabilité par unité de temps de passer de l'état initial  $|\psi_i\rangle$  (i.e. l'état lié de l'ion négatif) à l'état final  $|\psi_f\rangle$  (i.e. l'état de l'électron du continuum et de l'atome). Comme la longueur d'onde est grande devant la taille de l'ion, la probabilité de transition  $\Gamma$  s'exprime dans l'*approximation dipolaire électrique* comme :

$$\Gamma(\epsilon) = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \psi_f(\epsilon) | W_{DE} | \psi_i \rangle|^2 \rho_f(\epsilon) \quad (25)$$

où  $W_{DE}$  est le hamiltonien dipolaire électrique et  $\rho_f$  la densité d'états finale dans le continuum. Comme l'électron détaché ne ressent la présence de l'atome neutre que dans une région de l'espace très limitée, l'état final peut être considéré comme celui d'un « électron libre ». La densité d'états à 3 dimensions est proportionnelle à  $\sqrt{\epsilon}$ .

Évaluons maintenant  $|\psi_f(\epsilon)\rangle$ , qui décrit l'état d'une particule libre. Considérant la symétrie sphérique, on décompose la fonction d'onde sur la base des ondes partielles. La partie radiale de la fonction d'onde  $R_l(r)$  est solution de l'équation radiale qui contient le terme d'énergie centrifuge ; cette solution est proportionnelle à  $j_l(\frac{\sqrt{2m\epsilon}}{\hbar}r)$  où  $j_l$  est la fonction de Bessel sphérique d'ordre  $l$ . Comme  $j_l(r)_{r \rightarrow 0} \propto r^l$ , alors à basse énergie,  $|\psi_f(\epsilon)\rangle \propto j_l(k) \propto k^l \propto \epsilon^{l/2}$ . Ainsi, la variation de la section efficace de photodétachement à 1 photon débute près du seuil comme :

$$\sigma(\epsilon) \propto \epsilon^{l+\frac{1}{2}} \propto k^{2l+1} \quad (26)$$

où  $k$  représente le module du vecteur d'onde. Un calcul plus rigoureux prend en compte le potentiel d'interaction entre l'électron et le coeur atomique. Ce dernier décroît plus vite que le potentiel centrifuge ( $\frac{l(l+1)}{2mr^2}\hbar^2$ ) à grande distance  $r$  de séparation entre l'atome et l'ion négatif, la section efficace de détachement conserve la forme précédemment calculée. Cette loi de variation est appelée « Loi de seuil de Wigner » et a été établie en 1948 [Wi48]. L'auteur démontra que ce comportement était généralisable aux sections efficaces de processus collisionnels produisant deux particules d'énergie proche d'un seuil.

Ainsi, pour chaque onde partielle, la section efficace de détachement croît à partir de zéro au seuil. Ce comportement est à nouveau très différent de celui observé dans le processus de photoionisation où la section efficace au seuil est toujours égale à la valeur limite de probabilité de section efficace de photo-excitation de la série de Rydberg correspondante. Le signal de photoionisation n'est pas nul au seuil et en raison de la résolution finie de l'excitation, l'ionisation débute sous le seuil non perturbé, ce qui rend par ailleurs difficile son observation. Pour revenir au photodétachement, précisons que la dépendance en puissance de  $l$  favorise les ondes partielles de moment angulaire le plus faible permis par les règles de sélection. Considérons que l'électron en excès lié de l'ion négatif possède un moment angulaire orbital  $l_0$ . Lors de son détachement par un photon, l'électron produit possède un moment angulaire  $l = |l_0 \pm 1|$ . Ainsi, un électron  $p$  se

détachera en onde  $s$  ou  $d$ , mais la loi de seuil favorise l'onde  $s$  à basse énergie, la barrière centrifuge de hauteur proportionnelle à  $l(l+1)$  supprimant la composante de haut moment. Dans des conditions de polarisations particulières (circulaire), on observe le signal de détachement en onde  $d$  [BSH01]. L'électron  $s$  ne produira quant à lui que des ondes partielles  $p$ . En conséquence, on prédit facilement la symétrie des ondes électroniques produites près du seuil pour les éléments du tableau périodique. Par exemple, tous les ions négatifs appartenant aux colonnes du tableau allant de IIIA à VIIA se détache en onde  $s$  dans l'état fondamental. Enfin, un exemple de variation de la section efficace de photodétachement en onde  $s$  en fonction de l'énergie du photon est représenté sur la figure 30, issue de la référence [SBH98]. L'apparition du signal de photodétachement en onde  $s$  est soudaine et abrupte car la dérivée de cette courbe diverge à l'origine. Ce comportement facilite la détermination de l'énergie de détachement à partir de ce spectre.

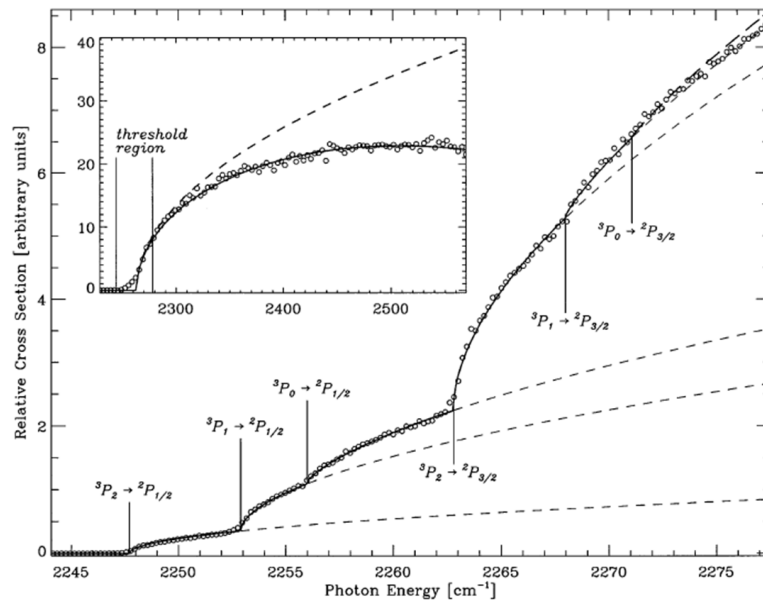


FIG. 2. Photodetachment yield versus laser wavelength. The overall result of a Wigner  $s$ -wave fit is indicated by the solid line (and extrapolated with long dashes). Individual thresholds are extrapolated with dashed lines. Inset: Relative photodetachment cross section up to  $320 \text{ cm}^{-1}$  (15%) above threshold. The dashed line represents a fitted Wigner  $s$  wave and the solid line an  $s$  wave with leading correction. These two lines define the upper and lower limits of  $s$ -wave thresholds within the ZCC model.

FIGURE 30 – Variation de la section efficace de photo-détachement en fonction de la longueur d'onde du laser. Exemple du bore, figure tirée de la référence [SBH98].

### b) Rapport de branchement entre états avec structure interne

En général, les atomes ou les ions possèdent différents états de structure fine ou hyperfine. L'existence de ces niveaux va se traduire sur la variation de section efficace par l'apparition de différentes voies possibles de détachement (cf. FIG. 30). Dès le début des expériences de photodétachement dans les années 1970, des efforts théoriques ont été menés pour interpréter l'efficacité relative de ces multiples voies. D'après l'analyse de Rau et Fano [RF71] dite de « Frame transformation », l'intensité relative d'une transition particulière de structure fine peut être calculée de façon analytique en ne retenant que la

dépendance géométrique, c'est-à-dire la partie angulaire des fonctions d'onde. Ce calcul s'effectue par une méthode qualifiée de « standard » par notre spécialiste dans le groupe, C. Delsart qui rédige souvent des notes complètes sur ces problèmes. Les annexes des références [BCD06] et [BDV01] donnent deux exemples de calculs, avec structure fine et hyperfine.

Considérons un cas souvent rencontré dans nos expériences, où l'ion et l'atome sont dans l'état fondamental et sont décrits par le couplage LS, lorsque l'hamiltonien commute avec les moments angulaires  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{S}$ . L'énergie des configurations électroniques se scinde en termes spectraux caractérisés par les nombres quantiques  $L$  et  $S$  eux mêmes décomposés sous l'effet de l'interaction spin-orbite en niveaux caractérisés par le nombre quantique  $J$ . La réaction de photodétachement s'écrit :

$$X^- [n_i l_i^N (S_i L_i) J_i] + \hbar\omega \rightarrow X [n_i l_i^{(N-1)} (S_a L_a) J_a] + e^- [(s_e l_e) j_e] \quad (27)$$

L'état final qui intervient dans la règle d'or de Fermi est un complexe formé de l'atome et de l'électron, avec un moment angulaire total  $J$  calculé en utilisant le schéma de couplage  $J_a j_e$ . Pour déterminer les intensités relatives  $I(J_i, J_a)$  des transitions il faut décomposer l'état du complexe (atome + électron) en fonction de l'état de l'atome et celui de l'électron. L'algèbre de Racah conduit à une expression des intensités :

$$I(J_i, J_a) = [J_a, J_i] \sum_J [J] \left\{ \begin{array}{ccc} L_i & J & S_a \\ L_i & S_i & J_i \end{array} \right\}^2 \left\{ \begin{array}{ccc} J & 1 & J_a \\ L_a & S_a & L_i \end{array} \right\}^2 \quad (28)$$

La valeur absolue de l'intensité dépend de l'élément de matrice de l'opérateur dipolaire électrique  $\langle n_i l_i | r | \epsilon l \rangle_L$ , calculé entre les fonctions d'onde radiales, celle de l'état initial de l'électron lié à l'ion et celle de l'état final de l'électron libre, d'onde partielle  $l$  et d'énergie  $\epsilon$ .

Une autre méthode de calcul, appelée « parenté fractionnelle », a été introduite [EL79] pour l'interprétation de mesures de section efficace du  $\text{Fe}^-$  et utilise le coefficient de parenté fractionnelle. Ce coefficient permet d'exprimer l'état de configuration  $l^N$  en fonction de la configuration  $l^{N-1}$ . Le calcul est toujours géométrique mais cette fois le détachement est un processus direct à un électron. Le photon du laser « annihile » un électron de moment angulaire  $l_i$  de l'ion négatif pour le promouvoir dans le continuum. Nous avons vérifié que les applications numériques utilisant les deux techniques de calcul donnaient les mêmes résultats. Nous devons à O. Scharf et M. Godefroid la démonstration formelle de l'équivalence de ces deux approches [SG08]. Dans leur article, les auteurs expliquent aussi que la méthode dite « standard » que nous utilisons est un cas particulier d'une formulation plus générale [PS93], valable aussi pour un électron de moment cinétique non nul. Enfin pour comparer les intensités de transitions aux expériences, le résultat du calcul géométrique doit être pondéré par la distribution des populations initiales, proportionnelles au facteur de Boltzmann.

### c) Au delà de la loi de seuil

La loi de seuil de Wigner permet de connaître le comportement de la section efficace de détachement pour des énergies voisines du seuil. A plus haute énergie, même si on reste dans l'hypothèse de l'électron libre, la section efficace varie avec l'énergie au prorata de la variation de l'intégrale de recouvrement  $\langle n_i l_i | r | \epsilon l \rangle_L$ . Comme le fait remarquer P. Andersson dans sa thèse [An09], on peut déterminer l'ordre de grandeur de l'énergie  $E(\sigma_{Max})$  à laquelle le maximum de la section efficace est atteint en fonction du rayon  $r_0$  de l'ion négatif. L'hypothèse est que le maximum de section efficace est atteint lorsque le recouvrement est lui aussi le plus important. Le potentiel de l'électron lié à l'ion est assimilé à un puits infiniment profond. Dans ces conditions, la fonction d'onde d'un état initial  $s$  est une sinusoïde d'extension  $r_0$ , où  $r_0$  est la largeur du puits. Le maximum de recouvrement est obtenu lorsque la fonction d'onde de l'électron libre, de longueur d'onde de De Broglie notée  $\lambda_{dB}$ , est « en phase » avec celle de l'état initial, i.e. lorsque  $\lambda_{dB} = 2r_0$ . Si en plus on considère que toute l'énergie du photon est convertie en énergie cinétique électronique, on peut en déduire la valeur de l'énergie du photon pour laquelle la section efficace est maximum :  $E(\sigma_{Max}) = \left(\frac{h}{r_0}\right)^2 \frac{1}{8m_e}$ . Ce modèle très simple donne le bon ordre de grandeur de la taille d'un ion négatif en fonction du maximum de photodétachement. On peut montrer que la valeur maximale de la section efficace est proportionnelle à la taille de l'ion [SW79].

Pour des photons encore plus énergétiques, la section efficace décroît vers une valeur nulle. En plus des arguments de recouvrement, on peut comprendre cette décroissance qualitativement en rappelant qu'un électron ne peut pas isolément absorber un photon, ceci en raison des lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion qui doivent être simultanément satisfaites. L'électron soumis à un rayonnement d'énergie très supérieure aux énergies de liaison peut se modéliser de cette façon. Ce raisonnement s'applique également au cas de la photoïonisation.

De manière plus quantitative, le comportement de la section efficace en fonction de l'énergie ainsi que la limite de validité de la loi de Wigner ont été largement étudiés expérimentalement (cf. par exemple l'encart de la Fig. 30). Deux modèles ont ensuite été proposés pour fournir une formule analytique de la variation de la section efficace de détachement à plus haute énergie. O'Malley [OMa65] inclut les forces à longue distance, jusque là négligées, entre l'électron détaché et le coeur neutre. Farley [Fa89b] étudia quant à lui le domaine de validité de la loi de seuil en s'appuyant sur le modèle ZCC « Zero Core Contribution », qui est un modèle semi-empirique donnant une formule analytique de la section efficace [SW79]. Malgré tout, ces théories échouent en pratique à décrire les mesures effectuées sur une large gamme spectrale [CCT96, BSH99]. L'accord n'est jugé convenable que sur un domaine d'environ 3% au-dessus de l'énergie de liaison, et parfois, comme dans le cas du césium, la loi ne s'applique que sur 200  $\mu\text{eV}$ , soit environ  $1,6 \text{ cm}^{-1}$  [SRN78]. De façon assez remarquable, le comportement au seuil a récemment

Précision ( $\mu\text{eV}$ )	Elément	onde	Technique	Article
0,6	Soufre	s	PM CW	[CBD10]
0,7	Silicium	s	PM CW	[CBD10]
0,9	Oxygène	s	PM CW	[CBD10]
2,5	Fluor	s	PM CW	[BDG01]
3	Brome	s	LPT	[BCD89]
3,8	Iode	s	PM pulsé	[PBD09]
7	Tellure	s	LPT	[HKR96]
12	Potassium	s	LPT	[ASK00]
13	Bismuth	s	LPT	[BH01]
15	Etain	s	LPT	[SBB98]
15	Germanium	s	LPT	[SBB98]
18	Hydrogène	p	LPT	[LML91]
20	Rubidium	s	LPT	[FBH78]
20	Carbone	s	LPT	[SBB98]
20	Lithium	s	LPT	[HHK96]

TABLE 2 – Les 15 affinités électroniques les mieux connues expérimentalement. PM : « Photodetachment Microscopy », LPT : « Laser Photodetachment Threshold ».

été étudié sur He et S par détachement d'électron interne, et cette fois, le domaine de validité est relativement important [BBG05].

#### 4.2.2 Méthodes expérimentales

De la mesure de la variation de la section efficace au seuil, on peut déterminer expérimentalement l'énergie de liaison de l'ion négatif. Toutes les affinités électroniques sont désormais mesurées par des méthodes spectroscopiques utilisant le laser pour le détachement.

La technique LPT (tunable Laser Photodetachment Threshold) consiste à enregistrer la variation de section efficace en fonction de la longueur d'onde du laser et à déterminer le seuil en interpolant la loi de Wigner, avec correction si nécessaire. La majorité des affinités électroniques mesurées, une cinquantaine, sont déterminées avec cette technique qui est utilisée depuis 1970 [LW70]. Comme on le voit dans la table 2, où j'ai reporté les 15 affinités les mieux mesurées, cette spectroscopie est très précise. La méthode LPT est appliquée aux deux symétries courantes de détachement, en onde  $s$  et en onde  $p$ . Si possible, on privilégie la voie en onde  $s$  où la variation de la section efficace est plus nette au démarrage. Pour ce faire, on peut réaliser le détachement via un état atomique excité, comme dans le cas des alcalins où l'ion de départ  $A^-$  se transforme en atome

excité  $A^*(npJ)$  ([HHK96] pour Li, [ASK00] pour K et [FBH78] pour Rb). La meilleure résolution atteinte avec la technique LPT a été obtenue sur le brome au laboratoire Aimé Cotton [BCD89]. La précision est d'environ  $0.015 \text{ cm}^{-1}$ , atteinte grâce à l'utilisation d'un laser pulsé monomode. En onde  $p$ , la précision est moins bonne, d'environ  $0,15 \text{ cm}^{-1}$  pour la mesure effectuée sur l'hydrogène [LML91].

En compilant les articles concernant cette spectroscopie de seuil, je me suis rendu compte que cette technique n'avait jamais été appliquée en utilisant un laser continu. La détection est certainement moins aisée car l'excitation pulsée permet d'utiliser un discriminant temporel. Malgré tout, il y a peut être moyen de tirer avantage de la meilleure résolution des systèmes continus et de leur plus grande stabilité en intensité.

L'autre méthode qui consiste à déterminer les énergies de seuil est le LPES (Laser Photodetachment Electron Spectrometry). La longueur d'onde du laser, généralement produite par un système continu et puissant, est fixe. Le photoélectron est placé dans un champ électrique homogène et constant. Son mouvement est celui d'une particule chargée uniformément accélérée ; les trajectoires sont paraboliques et la projection des points d'arrivée des électrons sur un plan perpendiculaire au champ  $F$ , situé à une distance  $D$ , fait apparaître des cercles de rayon maximum,  $R_{Max} = 2\sqrt{\frac{D\epsilon}{qF}}$ . Ainsi, la mesure du rayon des trajectoires observées sur le détecteur permet de déduire l'énergie  $\epsilon$  du photoélectron. Cette méthode a l'avantage de donner une information simultanée lorsqu'il existe plusieurs seuils ; à chaque énergie de photoélectrons  $\epsilon_i$  correspond un rayon  $R_i$ . Elle est aussi plus souple expérimentalement car elle permet de recueillir un signal utile lié au détachement même si l'énergie est très au dessus du seuil. A titre d'exemple, cette technique a permis de mettre en évidence l'existence de l'ion  $\text{Ca}^-$  [PTC87]. En contre-partie, la résolution est en général moins bonne qu'avec le LPT, de quelques meV.

### 4.3 Photodétachement en champ électrique

Les mesures de variation de section efficace de photodétachement en champ électrique ont débuté dans les années 80. Les expériences ont été réalisées en onde  $p$  (sur H [BMS87] ou Au [GDL93]) ainsi qu'en onde  $s$  (sur Rb [FBH78], Cl et S [BSG92]). Les spectres font apparaître des différences avec les mesures en champ nul (cf. FIG. 31) :

- le seuil de détachement est abaissé en raison de la modification de la barrière de potentiel subie par l'électron ;
- outre cet abaissement de seuil, le détachement peut se produire en dessous du seuil par effet tunnel. Le démarrage de la variation de section efficace est moins abrupt qu'en champ nul ;
- à plus haute énergie de détachement, le profil de la section efficace présente des oscillations qui dépendent du champ électrique  $F$  et de l'énergie de l'électron  $\epsilon$ .

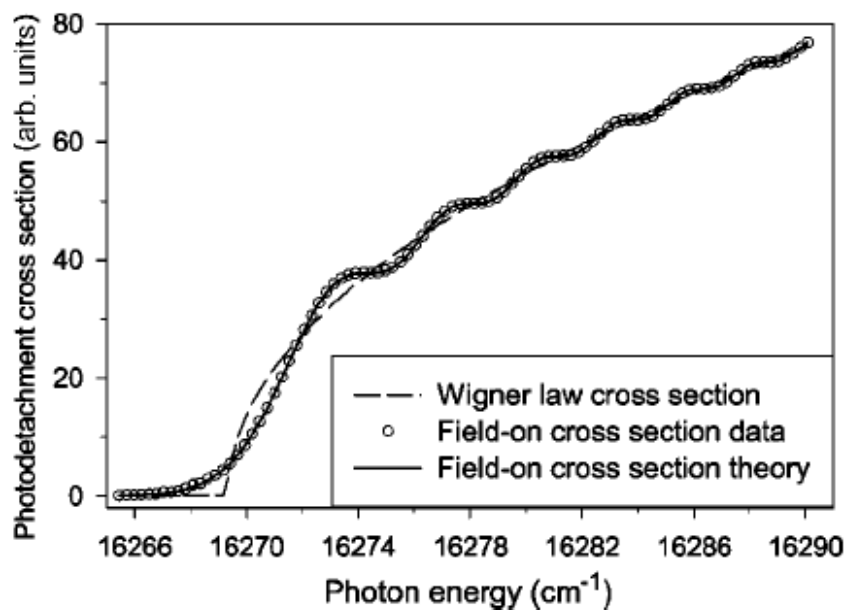


FIGURE 31 – Variation de la section efficace de photo-détachement de  $S^-$  en champ électrique en fonction de la longueur d'onde du laser, figure tirée de la référence [GGM01].

Différents modèles, traitant essentiellement le cas de l'hydrogène, [RW88, WRG88, DD88b, Fa89a], s'accordent de manière qualitative avec les données expérimentales. En général, la section efficace en champ électrique s'exprime simplement en fonction de celle en champ nul :  $\sigma_F = H(\epsilon, F)\sigma_{F=0}$ ,  $H$  étant une fonction oscillante de  $\epsilon$  et  $F$ . Cette formule généralise la loi de Wigner en champ électrique.

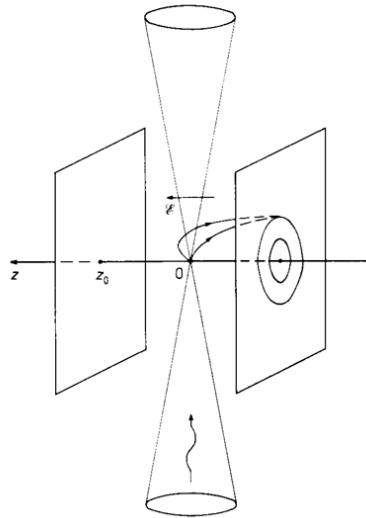
Durant les années 90, plusieurs expériences se déroulèrent dans le but d'explorer les propriétés du photodétachement d'ions non-hydrogénoïdes en champ électrique. S'agissant de S et de Cl, des désaccords entre la théorie et les données ont subsisté quelque temps. Le perfectionnement des techniques expérimentales permit d'établir un accord convenable (cf. FIG. 31) [GGM01], permettant de valider les modèles [DFS93, Fa94]. Plus récemment, l'effet tunnel et la modulation de la section efficace ont été étudiés sur les spectres obtenus par LPT dans le groupe d'Haugen, notamment sur C [SBB98, BH01].

L'effet tunnel et les oscillations présentes sur les spectres de photodétachement en champ électrique ont en réalité été observés quelque temps auparavant sur les spectres de photoionisation [FEB78, LDB81, BCD85]. En 1980, Fabrikant interpréta dans l'approximation semi-classique ces oscillations comme un phénomène d'interférences [Fa80]. Dans les deux cas, les trajectoires des électrons en champ électrique présentent différents chemins pour se rendre du noyau à un autre point de l'espace. La superposition des trajectoires provoque l'oscillation de la section efficace totale. Ce phénomène d'interférence peut se manifester en différents points de détection possibles. Plus précisément, on peut prévoir l'existence d'une figure d'interférence dans un plan perpendiculaire au champ constant. C'est ainsi que Fabrikant d'une part, Demkov, Kondratovich et Ostrovskii



## Photoionization of a hydrogen atom

3791



**Figure 3.** A possible experimental set-up for observation of the interference picture. The photoionization (photodetachment) occurs in the focus of the laser rays between the condenser plates. The distance between the plates is equal to  $2z_0$ . The plates generate the homogeneous electric field of the strength  $\mathcal{E}$ . The beam of atoms or the beam of negative ions can be directed perpendicular or parallel to the plates. Two trajectories leading from the ionization point  $O$  to the same point on the screen are pictured. Also the interference pattern circles are pictured in the plane screen perpendicular to the electric field direction.

FIGURE 32 – Schéma de principe de l'expérience de microscopie de photoionisation ou de détachement [KO90].

d'autre part, publièrent une série d'articles au début des années 80 démontrant la possibilité d'observer ces interférences dans le cas des ions négatifs (cf. FIG. 32). L'expérience alors proposée est interférométrique, les franges claires et sombres à enregistrer correspondent aux ventres et aux noeuds de la fonction d'onde du photo-électron. Les montages réalisés sur ces principes permirent l'observation macroscopique de phénomènes quantiques d'échelle microscopique : il s'agit des microscopes de photodétachement [BDD96] et de photoionisation [NOV02].

## 5 La microscopie de photodétachement

Les relations et formules relatives au microscope de photodétachement ont largement été décrites dans les thèses du groupe [Du96, Va99, Go03, Ch06]. Il faut aussi mentionner les travaux de thèse de C. Bracher [Br99] et de T. Kramer [Kr03], menés sous la direction de M. Kleber. Ces théoriciens ont développé un formalisme original et complet conduisant à la description de la propagation des ondes de matière produites par une source quantique. Leurs théories dépassent le cadre de l'interprétation des interférogrammes de photodétachement, elles s'étendent par exemple à la description de la chute d'un condensat de Bose-Einstein sous l'effet de la gravité ou à la microscopie par effet tunnel [KBK02].

A noter par ailleurs que la microscopie de photoïonisation a été mise en évidence en 2002 [NOV02] sur l'atome de Xénon. Les interférogrammes présentent une structure plus complexe en raison de l'interaction coulombienne. La distribution spatiale des photoélectrons issus de l'ionisation de l'hydrogène en champ électrique n'a été calculée que récemment [ZD10a, ZD10b].

## 5.1 Problématique : un interféromètre à deux ondes obtenu par chute libre

Dans le paragraphe précédent j'ai rappelé comment la réaction de photodétachement par laser permettait de créer une source d'électrons ponctuelle et mono-énergétique. On place ensuite les photo-électrons dans un champ de force constant, ici électrique. Il s'agit du problème le plus simple de mécanique classique après celui traitant du mouvement d'une particule libre. A énergie fixe, chaque point d'un détecteur peut être atteint par deux trajectoires paraboliques (cf. FIG.33.a). Bien sûr, une telle expérience réalisée avec des billes (non cohérentes) évoluant sous l'effet de la gravité ne conduit pas à observer un système d'interférences !!

Le point clef dans l'expérience est que la source produite par photodétachement est cohérente, et l'énergie d'émission est fixée par la longueur d'onde du laser. Plus précisément, le temps de cohérence de la source doit être supérieur à la différence de temps classique entre les deux chemins. Lorsque le photodétachement se produit en onde sphérique (onde s), toutes les trajectoires paraboliques sont remplies d'une densité de courant électronique constante. A une distance  $z_0$ , l'onde directe et l'onde réfléchi par le champ électrique se rejoignent et en raison de la symétrie cylindrique imposée, le système de franges est une série d'anneaux sombres ou clairs. Comme pour les expériences d'interférences électroniques obtenues par un système de fentes d'Young [MD56], l'électron détaché est détecté en un seul point : la construction de l'interférogramme résulte de l'accumulation d'électrons sur le détecteur. Ici l'élément qui permet la séparation du front d'onde est immatériel, il s'agit du champ électrique. Enfin, il faut noter que l'expérience de microscopie de photodétachement illustre particulièrement bien comment les mécaniques, quantique et classique, sont reliées via l'action classique qui intervient le long des trajectoires.

## 5.2 Courant électronique créé par une source ponctuelle libre

### 5.2.1 Grandeurs caractéristiques et expression de la densité de courant

Différents paramètres classiques ou quantiques interviennent dans les relations permettant de décrire la densité de courant observée sur le détecteur. Je récapitule dans

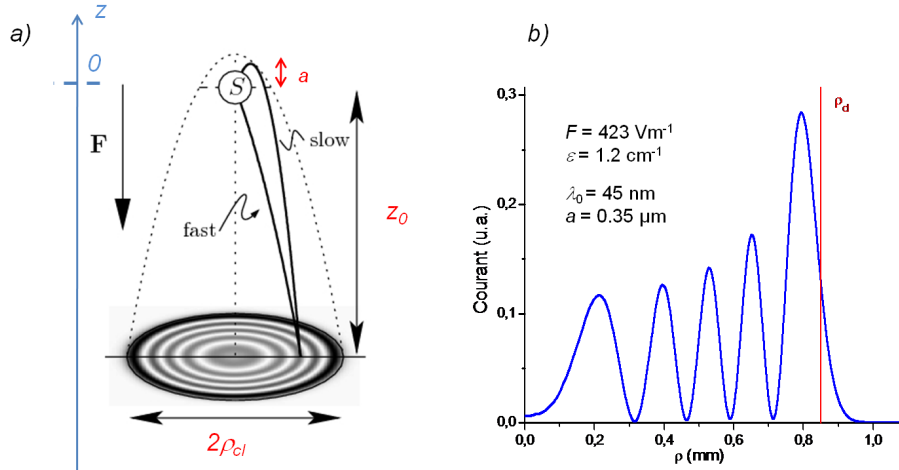


FIGURE 33 – a) En présence d'un champ électrique uniforme, les deux trajectoires classiques possible du photo-électron provenant d'une source isotrope  $S$  conduisent à des interférences observées sur un détecteur placé à une distance macroscopique  $z_0$  (figure tirée de [BDK05]). b) Densité de courant théorique en fonction de la distance au centre de l'interférogramme.

la table 3 ces différentes grandeurs en donnant leur nom, leur notation, leur expression (dans l'approximation du détecteur éloigné) et l'ordre de grandeur typique dans nos conditions expérimentales.

Dans une approche quantique rigoureuse, la distribution électronique en  $\mathbf{r}$ , avec  $r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$ , d'une source ponctuelle d'électron localisée à l'origine évoluant dans un champ constant et monoénergétique  $\epsilon$  est la fonction de Green  $G(\mathbf{r}, \mathbf{0}; \epsilon)$  du problème. Étant donnée la symétrie cylindrique, la solution s'exprime naturellement en coordonnées paraboliques,  $\xi = r + z$  et  $\eta = r - z$ . Ce système de coordonnées permet la séparation du mouvement d'un électron dans un champ électrique créé par la somme d'un champ constant et d'un champ coulombien. Ces coordonnées interviennent donc aussi dans la description de l'atome d'hydrogène en champ électrique et permettent de rendre compte de l'effet Lo Surdo-Stark dans les spectres continus [ADS91] ou réalisés au dessus de la limite d'ionization [LKB79]. La fonction de Green est la transformée de Fourier temporelle du propagateur  $K(\mathbf{r}, \mathbf{0}; t)$  qui, lui, décrit plutôt la propagation à partir d'une source impulsionnelle émise à l'instant initial.

La forme exacte analytique de la fonction de Green d'une particule uniformément accélérée a été établie en 1976 [DS76] et redémontrée en 1998 [BBG98] dans le cadre du formalisme des sources quantiques introduites dans l'équation de Schrödinger. Ce formalisme très général permet aussi pour notre expérience de calculer le courant créé par des distributions de moments angulaires non nuls, i.e. avec des ondes partielles avec  $l$  supérieur à zéro [BKK03] et de prendre en compte l'extension spatiale de la source [KBK02]. A partir de la fonction de Green, la théorie exprime la dépendance du

Nom	Notation	Expression	Ordre de grandeur
Hauteur de chute	$z_0$	-	0,514 m
Champ électrique	$F$	-	150 - 450 V/m
Energie cinétique de l'électron	$\epsilon$	-	0,4 - 2 eV
Vitesse de l'électron	$V_0$	$\frac{\sqrt{2\epsilon}}{m}$	4,2 - 9,4 km.s <sup>-1</sup>
Hauteur de remontée	$a$	$\frac{\epsilon}{qF}$	0,3 - 1,65 $\mu$ m
Rayon classique	$\rho_{cl}$	$2\sqrt{az_0}$	0,4 - 1,8 mm
Temps de chute moyen	$\bar{T}$	$\sqrt{\frac{2mz_0}{qF}}$	100 - 200 ns
Différence extrême des temps de vol	$\Delta T$	$\frac{2\sqrt{2m\epsilon}}{qF}$	100 - 700 ps
Vitesse de chute moyenne	$\langle v \rangle$	$\frac{z_0}{\bar{T}}$	$2,6 \times 10^3$ - $4,5 \times 10^3$ km.s <sup>-1</sup>
Longueur d'onde caractéristique	$\lambda_0$	$(\frac{\hbar^2}{2mqF})^{(1/3)}$	45 - 60 nm

TABLE 3 – Grandeurs usuelles intervenant dans la description théorique de la microscopie de photodétachement. Les lettres  $q$ ,  $m$  et  $\hbar$  désignent respectivement la valeur absolue de la charge de l'électron, sa masse et la constante de Planck réduite.

courant total produit et la distribution spatiale des électrons en fonction de l'énergie. Dans l'approximation du détecteur éloigné ( $z_0 \gg a$ ), le courant en  $-z_0$  admet une intensité oscillante qui ne dépend que de la distance à l'axe  $\rho$  :

$$j_{z_0} \propto Ai^2 \left[ \frac{1}{\lambda_0} \left( \frac{\rho^2}{4z_0} - a \right) \right] \quad (29)$$

où  $Ai$  désigne la fonction d'Airy. On représente sur la figure 33.b cette distribution radiale de courant pour des valeurs usuelles utilisées lors de l'expérience.

### 5.2.2 Commentaires sur l'expression de la distribution spatiale de courant

La nature quantique de la distribution de courant apparaît dans les oscillations représentées sur la figure 33.b. On remarque aussi que les électrons peuvent être détectés au delà du rayon classique maximum  $\rho_{cl}$ , dans une région classiquement interdite. La présence d'électrons, avec une probabilité exponentiellement décroissante au delà de cette limite, est interprétée comme étant un effet tunnel [BBG98]. Sur la figure 34.a, on représente l'évolution de l'interférogramme en fonction de l'énergie du photo-électron. Pour de grands arguments en valeur absolue de la fonction d'Airy, on peut écrire :

$$j \propto \sqrt{\epsilon} \frac{1 + \cos\left[\frac{4}{3} \frac{\sqrt{2m\epsilon^3}}{\hbar q F} \left(1 - \frac{\rho^2}{\rho_{cl}^2}\right)^{3/2} - \frac{\pi}{2}\right]}{2\pi \rho_{cl}^2 \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{\rho_{cl}^2}}} \quad (30)$$

Le terme en  $\sqrt{\epsilon}$  est la signature de la loi de seuil de Wigner dans la densité de courant. La phase maximum de la structure oscillante,  $\Delta\Phi_{Max}$ , est la plus grande au centre. Son

expression :

$$\Delta\Phi_{Max} = \frac{4}{3} \frac{\sqrt{2m\epsilon^3}}{\hbar q F} \quad (31)$$

fait apparaître une variation en  $\epsilon^{3/2}$ . Ainsi, compter le nombre d'anneaux de l'interférogramme (qui varie donc en  $\epsilon^{3/2}$ ) est une méthode plus sensible que de mesurer le diamètre de la tache (qui change en  $\epsilon^{1/2}$ ) pour déterminer l'énergie du photo-électron. Cette sensibilité vis-à-vis de l'énergie explique pourquoi la microscopie de photodétachement est la méthode la plus précise à ce jour pour déterminer les affinités électroniques.

Il est aussi intéressant de noter que l'on peut retrouver, à un facteur de normalisation près, les modulations de section efficace en réintégrant la distribution spatiale :

$$\sigma \propto \int_0^{+\infty} Ai^2 \left[ \frac{1}{\lambda_0} \left( \frac{\rho^2}{4z_0} - a \right) \right] 2\pi\rho d\rho \quad (32)$$

On retrouve ainsi la variation de section efficace en champ électrique, comme sur la figure 34.b. La section croît en  $\epsilon^{1/2}$  tout comme le prédit la loi de seuil. On constate à nouveau que les oscillations de section efficace en champ sont liées au phénomène d'interférence qui engendre la modulation spatiale de la densité de courant. De manière quantitative, le nombre de minimums observés (5 sur la figure 34.b pour une énergie de  $1,2 \text{ cm}^{-1}$ ) est le même que le nombre de noeuds de la distribution radiale à une même énergie et un même champ (cf. FIG. 33.b).

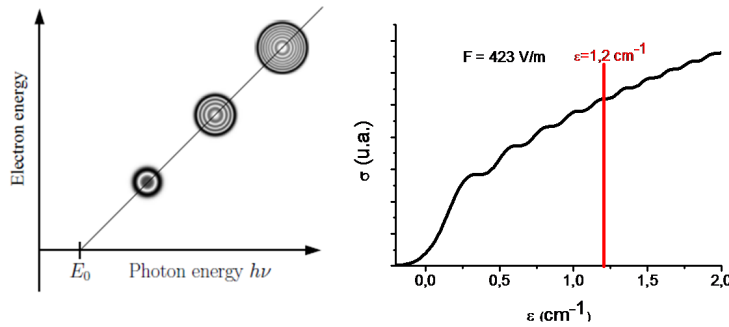


FIGURE 34 – a) Modification de l'interférogramme en fonction de l'énergie du laser ou de manière équivalente de celle du photo-électron (figure tirée de [BDK05]). b) Calcul de la variation de section efficace de photodétachement dans un champ électrique  $F=423 \text{ V.m}^{-1}$  calculée à partir de l'équation 32.

L'expression de la distribution de courant permet aussi de déterminer des critères permettant de trouver les conditions d'observation des anneaux d'interférences. Historiquement [BDD96], ce travail a abouti à un diagramme de faisabilité qui a montré dans quel domaine l'expérience était réalisable. L'analyse de ces critères est parfois encore nécessaire lorsque nous souhaitons varier notablement les paramètres de l'expérience :

- le nombre d'anneaux observables doit être supérieur à 1 ;

- la taille de l'interfrange doit être supérieure à la résolution spatiale du détecteur. Lorsque l'énergie est trop importante, on ne résout pas la structure oscillante mais on observe tout de même une distribution de photoélectrons dite « classique », comme dans la technique LPES décrite précédemment. Les électrons s'accumulent préférentiellement sur un disque dont le rayon varie avec la racine carré de l'énergie ;
- la source d'électron n'est pas mono-énergétique mais comporte une distribution  $\Delta\epsilon$ . Dans l'expérience, c'est principalement l'effet Doppler (typiquement  $\Delta\epsilon_{Doppler} \approx 900$  MHz) qui provoque le détachement d'électrons d'énergies cinétiques différentes. Il en découle une nouvelle condition sur  $\epsilon$  et  $F$  pour que la phase ne soit pas trop sensible à cette dispersion.

De ces trois conditions, on établit que l'on observe aisément des anneaux d'interférences pour des champs allant de 150 à 450 V/m pour des énergies allant de 0,3 à 2 eV.

En outre, une conséquence de l'extension spatiale de l'ion négatif est que le seuil de détachement est abaissé en champ extérieur. Si on modélise le potentiel de la liaison de l'électron par l'ion négatif par un puits carré, dont la largeur est de 0,2 nm, le potentiel est abaissé d'environ  $6 \times 10^{-4}$  eV dans un champ électrique de 400 V.m<sup>-1</sup>. Ainsi, la mesure de l'affinité électronique en champ électrique permet de connaître celle en champ nul avec une précision limitée à 10<sup>-3</sup> eV.

### 5.3 L'approche semi-classique

Le problème de l'évolution d'un électron dans un champ constant peut être traité de manière semi-classique. C'est ainsi que Fabrikant donna une première expression de la densité de courant à observer [Fa80]. Cette approche permet de relier les mécaniques classique et quantique et s'apparente à la formulation de la mécanique quantique par « intégrales de chemin » établie par Feynman. La propagation d'une particule allant du point  $\mathbf{r}_i$  à l'instant  $t_i$  vers le point  $\mathbf{r}_f$  à l'instant  $t_f$  prend en compte toutes les trajectoires possibles avec une phase respective proportionnelle à l'action  $S$  divisée par l'unité d'action  $\hbar$ , y compris celles qui n'obéissent pas à l'équation newtonienne du mouvement. Le propagateur ainsi calculé, noté  $K$ , se simplifie lorsque le lagrangien est linéaire et/ou quadratique vis à vis de la position et de l'impulsion [Sc05] :

$$K(\mathbf{r}_f, t_f; \mathbf{r}_i, t_i) = F(t_i, t_f) e^{iS_{cl}/\hbar} \quad (33)$$

où  $S_{cl}$  est l'action évaluée le long du chemin classique. Dans notre problème, l'action ne dépend que de la différence de temps  $T = t_f - t_i$  et l'énergie totale  $E$  est une constante du mouvement le long des trajectoires classiques (problème conservatif).

Notre situation expérimentale ne consiste pas en une source impulsionnelle, émettant un électron à l'instant  $t_i$ . Il faut prendre en compte les amplitudes fournies par

la source stationnaire d'énergie définie  $\epsilon$ . L'amplitude initiale de l'onde électronique est proportionnelle à  $e^{-i\frac{\epsilon}{\hbar}t_i}$ . La fonction d'onde finale s'écrit donc :

$$\psi(\mathbf{r}_f, t_f) = \int_0^{+\infty} K(\mathbf{r}_f, t_f; \mathbf{r}_i, t_i) e^{-i\frac{\epsilon}{\hbar}t_i} dt_i \quad (34)$$

Comme nous l'avons mentionné précédemment, on voit clairement apparaître sous cette forme intégrale la transformée de Fourier du propagateur (propagation d'une source impulsionnelle) qui est la fonction de Green du problème (propagation d'une source stationnaire). D'après l'expression du propagateur, la fonction d'onde finale à l'instant  $t_f$  s'écrit [BBD01] :

$$\psi(\mathbf{r}, t_f) \propto e^{-(i/\hbar)\epsilon t_f} \int_0^{+\infty} e^{(i/\hbar)[\epsilon T + S_{cl}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_f, T)]} dT \quad (35)$$

Parmi toutes les trajectoires classiques, seules celles qui rendent la phase stationnaire vont contribuer de manière significative à l'intégrale :

$$\epsilon + \frac{\partial S_{cl}}{\partial T}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_f, T) = 0 \quad (36)$$

Cette propriété est vérifiée par les trajectoires classiques dont l'énergie totale est  $E$ , égale à  $\epsilon$  l'énergie de la source. On remarque aussi dans l'intégrale (35) que la phase relative de l'onde partielle dépend directement de l'action réduite  $W$  qui diffère de l'action  $S$  lorsque les bras de l'interféromètre ne sont pas égaux :

$$W_{cl}(\mathbf{r}_f, \mathbf{r}_i; E) = S_{cl}(\mathbf{r}_f, \mathbf{r}_i; T) + ET \quad (37)$$

### 5.3.1 Résolution semi-classique du problème de la chute libre

Le mouvement de l'électron dans un champ constant fait intervenir un potentiel indépendant du temps :  $U = -\mathbf{r} \cdot \mathbf{F} = qFz$ . Identifier  $-\frac{\partial S}{\partial T}(\vec{r}_i, \vec{r}_f, T)$  à l'énergie initiale électronique permet de trouver la fonction d'onde semi-classique sans avoir à résoudre les équations de Newton. L'expression de l'action classique en champ constant est démontrée dans plusieurs références [Sc05]. Ainsi, en chaque point  $\mathbf{r}_f$  du détecteur il existe 2 solutions avec des temps d'arrivée différents notés  $T^{+/-}$  comme représenté sur la figure 33.a. Dans l'approximation du détecteur éloigné,

$$\Delta T = T^+ - T^- = \sqrt{\frac{2m}{eFz_0}} \sqrt{\frac{4z_0}{eF}\epsilon - \rho^2} \quad (38)$$

Cette différence est maximale au centre, et à ces deux temps de parcours correspondent 2 actions réduites  $W_{cl}^{+/-}$ . La fonction d'onde finale se simplifie en :

$$\psi(\mathbf{r}, t_f) \propto e^{(-i\frac{\epsilon}{\hbar}t_f)} [\varphi_+ e^{(i\frac{\epsilon}{\hbar}W^+)} + \varphi_- e^{(i\frac{\epsilon}{\hbar}W^-)}] \quad (39)$$

### 5.3.2 Formule de Hamilton-Jacobi - cas à 1 dimension

La mécanique classique peut être décrite de plusieurs façons équivalentes : les équations de Newton, les formulations lagrangiennes ou hamiltoniennes. Ici, de façon assez naturelle, on se place du point de vue de Hamilton-Jacobi car l'approximation semi-classique fait intervenir l'action réduite  $W_{cl}$ . L'équation aux dérivées partielles de Hamilton-Jacobi conduit à retrouver d'une autre façon l'expression de la différence de phase. Cette équation s'écrit à trois dimensions :

$$\frac{\partial S_{cl}}{\partial t} + \frac{1}{2m}(\nabla S_{cl})^2 - \mathbf{r} \cdot \mathbf{F} = 0 \quad (40)$$

et se simplifie à une dimension, selon  $z$ , en :

$$\underbrace{\frac{\partial S_{cl}}{\partial t}}_{-E} + \frac{1}{2m} \underbrace{\left(\frac{\partial S_{cl}}{\partial z}\right)^2}_{= \left(\frac{\partial W}{\partial z}\right)^2} + qFz = 0 \quad (41)$$

Cette équation admet deux solutions pour  $W$  :

$$W_{cl}^{+/-} = \pm \frac{2}{3qF} \sqrt{2m}(E - qFz)^{3/2} \quad (42)$$

Notons aussi, dans le cas à 1 dimension, que l'action réduite se déduit de l'impulsion  $p(z; E)$  par la relation :  $W_{cl}(z_f, z_i; E) = \int_{z_i}^{z_f} p(z; E) dz$ . L'expression de la différence d'action réduite à 1D permet de déterminer d'une autre façon la différence de phase maximale au centre.

Enfin, notons que la formulation de Hamilton-Jacobi permet une analogie avec l'optique [Go80]. En effet les surfaces d'égalles actions,  $W(p) = S(q, t) + Et$ , peuvent être considérées comme des fronts d'onde se propageant dans l'espace des configurations. De plus, l'impulsion vérifiant  $\vec{p}_f = \frac{\partial S}{\partial \vec{r}_f} = \vec{\nabla} W$ , la direction de  $\vec{p}$  est perpendiculaire aux surfaces d'iso-action réduite. Par analogie avec la construction de Huygens de l'optique géométrique, on identifie le chemin optique de notre onde à  $W$  et l'indice du milieu à  $\sqrt{2m(E - V)}$ . Ici, le front de l'onde est déformé lors de sa propagation sous l'effet du potentiel.

### 5.3.3 Applications de la description semi-classique. Notion d'orbite fermée

Au delà d'établir une correspondance entre les mécaniques classique et quantique, l'utilisation du formalisme semi-classique permet de résoudre des problèmes où la solution quantique n'a pas encore été calculée. C'est ainsi que Blondel et al. [BBD01] montrèrent l'invariance de la phase, à un facteur correctif près négligeable, de l'interférogramme créé par des électrons produits par une source en mouvement, comme dans notre situation expérimentale où les ions négatifs voyagent sous quelques centaines d'eV d'énergie cinétique.



Du et Delos ont mis en évidence, toujours dans le formalisme semi-classique, une famille de trajectoires très particulières, celles qui retournent au point source, nommées de ce fait « orbites fermées ». Grâce à l'analyse de ces chemins singuliers, ils ont interprété la dépendance spectrale des sections efficaces de photodétachement et de photoïonisation, en champ électrique et/ou magnétique [DD88c, DD88a, DD88b, PD93]. Dans le cas simple du mouvement de l'électron libre en champ uniforme, une seule orbite fermée existe et la différence de phase est reliée au temps de parcours de l'électron le long de celle-ci. D'après la relation (37), la dérivée partielle de l'action réduite par rapport à l'énergie est le temps de vol, le déphasage le long de l'orbite fermée s'exprime donc en fonction de la différence de temps  $\Delta T$  :

$$\Delta\Phi = \frac{\Delta W}{\hbar} = \frac{1}{\hbar} \int_0^\epsilon \Delta T(\epsilon') d\epsilon' \quad (43)$$

En champ électrique uniforme, l'orbite fermée est donc celle qui remonte le champ et repasse à l'origine avec le temps de révolution  $\Delta T_0(\epsilon) = 2\frac{mV_0}{qF}$ . Ainsi comme  $\Delta T_0(\epsilon)$  varie en  $\epsilon^{1/2}$ ,  $\Delta\Phi$  varie par intégration en  $\epsilon^{3/2}$ , comme dans l'expression donnée par l'équation 31.

Ainsi, le déphasage maximum (au centre) et par extension tout l'interférogramme que l'on observe à une distance macroscopique, se construisent le long de l'orbite fermée, sur une distance de l'ordre de  $2a$ . La conséquence de cette théorie est déterminante pour l'expérience. En effet, la phase dépend du champ électrique, qu'il est difficile de rendre homogène sur une grande région. Comme l'interférence se construit sur un domaine très restreint de l'espace, micrométrique, le champ électrique que nous devons appliquer et connaître est local. Après cette région franchie, les seules conséquences éventuelles d'in-homogénéités de champ sont le changement de position d'arrivée de l'interférogramme ou la déformation de la tache. Le nombre d'anneaux  $y$  est insensible.

## 6 L'expérience

Le bon fonctionnement du microscope fait appel à de nombreux domaines de la physique tels que l'optique et les lasers, l'électrostatique, la création et le guidage d'un jet d'ions, les techniques du vide et les systèmes de détection spatio-temporelle de particules. Ainsi la plus grande partie de notre travail au cours de ces années a consisté à construire, développer et améliorer les ingrédients nécessaires à l'enregistrement d'interférogrammes. Ce travail se fait souvent avec l'assistance des ingénieurs et des techniciens du laboratoire. Quelques pièces obsolètes, souvent issues d'essais infructueux, ont aussi trouvé place dans un musée (pièce C 31 du laboratoire).

Dans cette partie je décris l'ensemble du montage expérimental en ne donnant des détails que sur les éléments nouveaux mis au point depuis mon arrivée. L'expérience

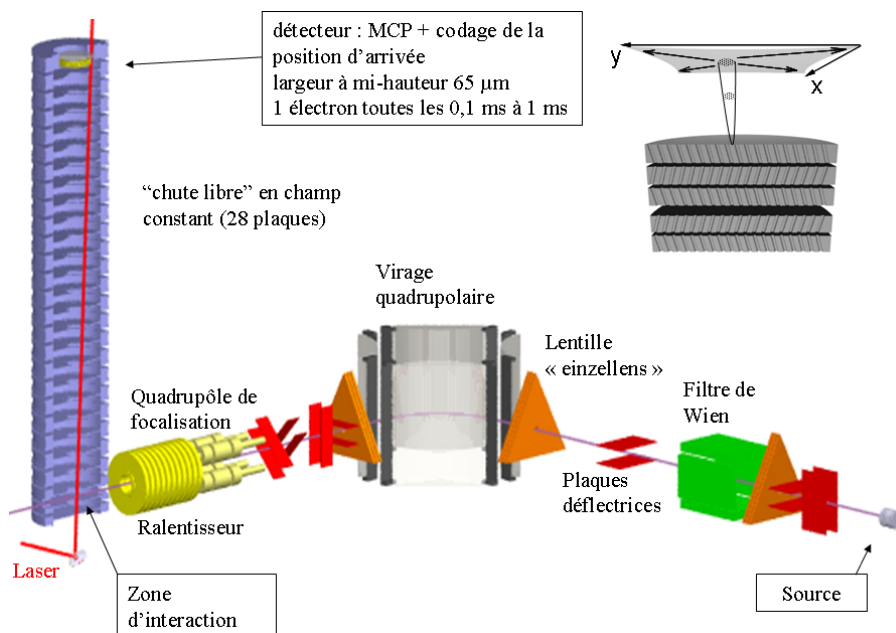


FIGURE 35 – Schéma de l'expérience où figurent la source, les éléments d'optique électrostatique nécessaires à la conduite du jet d'ion, la zone d'interaction, la colonne de champ et le détecteur en position de 1<sup>ère</sup> génération.

comporte trois volets (cf. FIG. 35) : le jet d'ions négatifs est créé et conduit dans une enceinte à vide. Les lasers sont situés sur une table optique, entourés de différents instruments de stabilisation et de caractérisation. Les photo-électrons sont produits dans une zone d'interaction. Ils remontent un champ électrique sur un demi mètre dans une colonne et leur position d'arrivée est détectée. Enfin, une part importante du travail auquel je n'ai pas participé est le traitement des données et l'ajustement quantitatif des interférogrammes enregistrés.

## 6.1 Le jet d'ions négatifs

### 6.1.1 Les sources d'ions

Nous avons produit les ions avec trois types de source. La majorité des résultats présentés ont été obtenus avec une source historique, issue d'une source commerciale achetée en 1983 et dont des pièces ont été petit à petit toutes remplacées. Il s'agit d'une source à décharge à cathode chaude. Baigné dans un mélange gazeux ou placé proche d'un sel, un filament de tungstène chauffé émet des électrons qui sont accélérés sous quelques dizaines de volts ; il se crée une décharge qui forme un plasma dans lequel le craquage des molécules gazeuses ou évaporées ainsi que les collisions entraînent des dissociations et recombinaisons qui permettent de créer divers ions négatifs. Le phénomène majoritaire est l'attachement dissociatif obéissant à la réaction :  $e^- + AB \rightarrow A^- + B$ .

Une différence de potentiel entre le corps de la source et une bague extérieure reliée à la masse permet d'extraire les charges négatives. Le filament se consomme régulièrement, sa durée de vie varie de quelques heures à quelques jours. L'optimisation du jet d'ions dépend de la tension de décharge appliquée, de la pression du mélange gazeux et de sa composition. Cette source implique des collisions assez peu énergétiques et seuls les processus d'attachement dissociatif très favorables peuvent être réalisés. Nous avons produit par cette méthode ces dernières années des jets d'ions négatifs de S, SH, OH, O, Br, Cl et I, avec des courants atteignant facilement quelques centaines de picoampères.

Afin d'accéder à des ions négatifs plus difficiles à produire, comme les ions métalliques  $\text{Au}^-$ , nous avons essayé de construire une source à spallation (sputtering) inspirée d'un article de Hotop et Lineberger [HL73]. Des ions positifs sont créés sous une décharge de quelques kV dans un gaz entre une anode et une cible qui joue le rôle de cathode. Malheureusement, nous avons eu des difficultés à stabiliser le nombre d'ions émis par une telle source. Nous nous sommes alors tournés vers une solution commerciale utilisant une technique voisine, une source à ions négatifs produits par spallation avec du césium (dite SNICS II, pour « Source of Negative Ions by Cesium Sputtering » fournie par le constructeur NEC, pour « National Electrostatic Corporation »).

### 6.1.2 La source SNICS II et son adaptation à notre installation

La construction et l'optimisation des sources à spallation avec du césium reposent essentiellement sur les travaux de Middleton [Mi83] et de Alton et al. [Al94]. Ce type de source est très utilisé sur les accélérateurs en tandem, comme ceux destinés à la datation au carbone 14. Le schéma de principe de la source est représenté sur la figure 36.a. Placé dans un réservoir chauffé, du césium s'évapore et est porté au contact d'une surface ionisante (« ionizer ») constituée d'une pièce de tungstène chauffée. Les atomes sont adsorbés et en raison de la différence entre la fonction de travail du tungstène et de l'énergie d'ionisation du césium, des ions  $\text{Cs}^+$  sont produits (loi de Saha-Langmuir). Ils sont alors accélérés et focalisés vers une cathode constituée d'une cible contenant différents atomes et/ou molécules. Le césium a deux fonctions : son impact sur la cible permet par spallation d'extraire des atomes et des ions et la fine couche qu'il forme à la surface de la cible refroidie conduit à augmenter la fraction d'ions négatifs produits, qui atteint environ 1% de la matière arrachée à la cathode dans les cas les plus favorables après une heure de fonctionnement. Les ions négatifs sont ensuite accélérés à travers une ouverture et sont extraits par une électrode (« extractor ») portée à un potentiel plus positif. Le courant d'ions produit dépend de la température du réservoir de césium, de celle de la surface d'ionisation et de la différence de potentiel entre la cathode et le reste de la source. Tous les mécanismes intervenant dans le sputtering ne sont pas totalement compris, mais grâce à une étude empirique et très exhaustive, Middleton dans son « Cookbook » [Mi89], donne la composition chimique de différentes cathodes

à utiliser suivant la nature des ions que l'on souhaite produire.

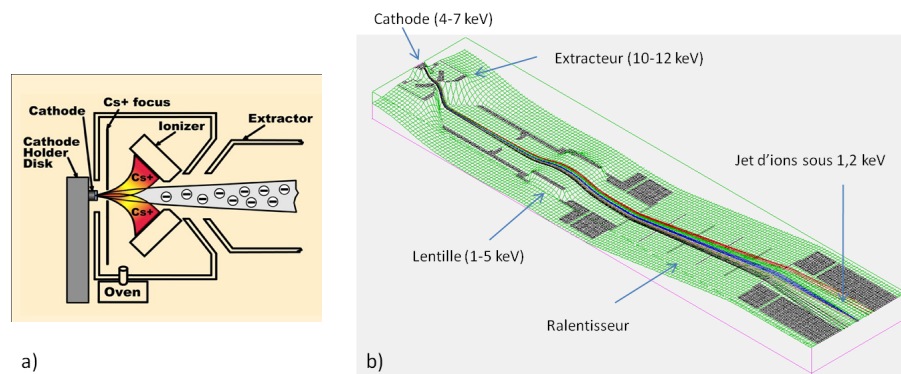


FIGURE 36 – a) Schéma de principe fourni par le constructeur (National Electrostatics Corporation) de la source d'ions SNICS II. b) Simulation sous le logiciel Simion [DDA90] des trajectoires des ions produits par la source. On représente aussi l'effet d'une lentille Einzel et d'un décélérateur.

Afin d'adapter cette source sur notre montage, nous avons aussi acheté une lentille et un décélérateur fournis par la société NEC. Nous pouvons ainsi produire un jet d'ions d'énergie cinétique fixe (typiquement de 1,2 keV) en sortie de décélérateur (cf. FIG. 36.b). Nous avons développé les alimentations électriques (3 sources de courant et 4 sources de haute-tension, toutes portées à un potentiel de référence flottant) en collaboration avec M. Chateau de la société SEFELEC.

Les premiers tests nous ont permis de former assez aisément des ions  $S^-$  et  $Au^-$ , ce que l'on savait déjà faire, mais aussi des ions  $P^-$  et  $K^-$ , ce qui était impossible avec une décharge à cathode chaude. Les courants d'ions produits sont bien moins intenses que les valeurs indiquées par le constructeur (on perd 3 ordres de grandeurs). Une telle différence s'explique car pour notre utilisation, nous décélérons le jet plutôt que de l'accélérer. Comme le confirment les simulations effectuées avec le logiciel Simion [DDA90] (cf. FIG. 36.b), une grande partie des ions sont alors perdus en sortie de source à cause de l'étalement des particules dû au ralentissement. Cet étalement est ici renforcé par les composantes radiales des champs électriques appliqués pour ralentir le jet.

### 6.1.3 La conduite du jet d'ions

Les ions sont acheminés de la source vers la zone d'interaction par différents éléments d'optiques électrostatiques, nécessitant le réglage d'une vingtaine de tensions :

- des plaques dévient les particules chargées ;
- des lentilles (type Einzel ou quadrupolaire) et des écorceurs confinent le jet ;
- un filtre de Wien, constitué de champs électrique et magnétique perpendiculaires et d'une fente en sortie, nous permet de sélectionner en masse les particules chargées

- de vitesse donnée. La résolution en masse, typiquement de  $1/30$ , dépend du champ magnétique appliqué et de la distance entre les fentes de sortie ;
- un virage électrostatique ne dévie pas les atomes ou molécules neutres qui sont éliminés du jet ce qui réduit les bruits parasites sur les détecteurs ;
  - un décélérateur ralentit le jet jusqu'à environ 300 eV. Sous une telle énergie cinétique, la vitesse des ions de soufre par exemple est encore de 40 km/s ;
  - au final après presque 3 mètres, une coupe de Faraday mesure un courant d'ions de quelques dizaines à quelques centaines de picoampères. On estime le diamètre du jet à 0,5 mm, les densités sont faibles, d'environ 20 ions/mm<sup>3</sup> pour le soufre.

## 6.2 Les lasers

Les sections efficaces de photodétachement, à quelques  $\text{cm}^{-1}$  au dessus du seuil, sont typiquement de l'ordre de  $2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$  (comme pour l'oxygène par exemple, d'après la référence [MG96]). Ainsi, avec un laser continu délivrant une puissance de 1 W focalisée sur 50  $\mu\text{m}$ , le flux de photons est d'environ  $5.2 \times 10^{22} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$  et la probabilité de détachement par unité de temps est d'environ  $10.000 \text{ s}^{-1}$ . Les ions négatifs, avec une vitesse voisine de 40 km/s, traversent le faisceau très rapidement, en 1 ns. Ainsi, la probabilité de détachement est très faible, d'environ  $1,8 \times 10^{-5}$ , nous produisons un électron toutes les fractions de ms pour un courant d'une centaine de picoampères. Afin de construire la figure d'interférence, nous devons donc accumuler les évènements de détachement sur une période variant de 5 à 20 minutes et utiliser un laser stabilisé en fréquence dont les fluctuations sont limitées à quelques MHz durant le temps d'acquisition.

Ces dernières années, nous avons essentiellement étudié par photodétachement en régime continu des ions dont les seuils sont situés dans la partie visible du spectre électromagnétique. Nous utilisons donc un laser à colorants en bénéficiant d'une grande expertise au laboratoire pour ce type de source. La partie optique de l'expérience comporte plusieurs éléments :

- un laser en anneau commercial de chez Spectra Physics, le modèle 380A pompé par un laser à argon ionisé. Ce modèle est assez ancien mais nous avons pu changer de nombreuses pièces à partir de différentes cavités du laboratoire (et aussi de quelques éléments provenant de l'ONERA ou de l'ENSTA). Nous réapprovisionnons aussi régulièrement des optiques. Au final, nous disposons d'un laser assez robuste qui nous a permis de réaliser des expériences entre 700 et 535 nm avec une puissance variant de 100 à 500 mW. L'émission à 535 nm requise pour le photodétachement de  $\text{Au}^-$  et de  $\text{SH}^-$  a été obtenue grâce à un nouveau colorant, le Pyrrométhène 556 ;
- la stabilisation à long terme repose sur un sigmamètre [JP75] conçu et fabriqué au laboratoire, lui même asservi avec un laser HeNe continu commercial. La fréquence

de cette source est fixée par l'asservissement en intensité de l'émission de deux modes consécutifs polarisés perpendiculairement et situés de part et d'autre de la bande de gain. Ce laser a une stabilité de l'ordre du MHz sur la journée ;

- la longueur d'onde a tout d'abord été mesurée avec un interféromètre de Michelson muni d'un bras mobile [CMC79] construit dans les années 70 au Laboratoire de l'Horloge Atomique. On compte, sur environ une seconde, le nombre de franges d'interférences qui défilent durant le mouvement du chariot. En comparant ce nombre pour le laser à colorant et pour un laser de référence, on déduit la longueur d'onde dans le vide du laser à colorant. Nous avons ensuite remplacé ce système par un interféromètre commercial à coins de Fizeau (module WSU High Finesse GmbH). A nouveau, on compare l'interférogramme produit par deux sources, celle de longueur d'onde inconnue et celle d'un laser de référence. Ce système commercial, fibré, est plus simple d'utilisation et demande moins de réglages quotidiens. La cadence d'acquisition est aussi plus rapide (quelques dizaines de ms) et on peut enregistrer les variations de longueur d'onde (à quelques MHz près) durant toute l'expérience. Au final, la précision relative de ces instruments, après calibration, est de  $2 \times 10^{-8}$ . On connaît ainsi la fréquence du laser à  $\pm 20$  MHz que l'on arrondit à  $\pm 1$  mk ;
- pour calibrer les systèmes de mesure de longueur d'onde, nous avons utilisé différents lasers de référence, tous stabilisés par absorption saturée sur une transition atomique ou moléculaire. Il peut s'agir d'un laser HeNe asservi sur l'iode ou d'une diode laser asservie sur une des transitions hyperfines des raies D du Rb ou du Cs.

Nous pouvons éventuellement étendre le domaine d'exploration vers l'infrarouge en utilisant un laser Ti :Sa commercial. A plus long terme, il peut aussi être intéressant pour nous de disposer d'un OPO commercial (le modèle Argos de chez Aculight par exemple) qui couvre la gamme 1 - 4,2  $\mu$ m. Nous accéderions ainsi aux seuils des nombreux éléments dont l'affinité électronique est comprise entre 0,3 et 1 eV.

## 6.3 L'observation des interférogrammes

A l'intersection du laser et du jet d'ions, dans une zone dite d'interaction, les photoélectrons sont produits dans un champ électrique constant établi dans une colonne. Après un demi-mètre, on mesure leur position d'arrivée sur un détecteur.

### 6.3.1 La colonne de champ électrique

La colonne de champ électrique est construite à partir de 28-29 plaques circulaires trouées au centre et polarisées. Initialement, elle a été conçue pour rendre le champ électrique le plus uniforme possible sur une distance macroscopique et blindée par une double chemise de  $\mu$ -métal afin d'éliminer les champs magnétiques parasites. En réalité,

nous savons désormais que ces deux contraintes expérimentales étaient surévaluées. Nous verrons dans la partie 8 que les interférogrammes sont très robustes vis à vis du champ magnétique. Nous savons aussi que la phase de l'interférogramme se construit dans une région de l'espace très réduite, avec un déphasage maximal le long de l'orbite fermée, ce qui nous oblige à n'établir un champ électrique constant que dans un domaine très réduit, de l'ordre de grandeur de quelques longueurs  $a$ .

Malgré tout, le champ doit être connu avec le plus de précision possible car une fois la phase de l'interférogramme interpolée, son module intervient dans la détermination de l'énergie cinétique des photoélectrons. Plusieurs effets expliquent que le champ réel est différent du champ nominal, donné par la tension appliquée divisée par la distance entre les plaques. Comme on peut le voir sur la simulation représentée sur la figure 37, le champ électrique créé par les plaques n'est pas constant. La variation, sur l'axe, est d'environ 1%. Le champ est régulièrement modulé autour de la valeur nominale en raison de l'ouverture (nécessaire au passage des électrons) finie des plaques épaisses. De plus, la distance entre les plaques n'est pas connue très précisément, elle dépend par exemple de l'épaisseur exacte des céramiques qui isolent les plaques les unes des autres. Un autre effet perturbateur du champ est la présence autour des plaques d'un potentiel fixe (mis à la masse afin d'éviter aux expérimentateurs de vivre dangereusement). Notamment, dans la zone d'interaction, située entre les plaques 2 et 3, des potentiels provenant du bas de la colonne viennent perturber le champ établi (cf. FIG. 37.b). En vain, nous avons essayé de rendre plus uniforme le champ autour de la zone d'interaction en jouant sur le diamètre des plaques. Au final, l'indétermination a priori sur la valeur du champ électrique est de 2 %, mais comme nous le verrons par la suite, nous avons mis au point une méthode pour le mesurer à quelques 0,1% près. Lors de la construction d'un microscope dit de 3<sup>ème</sup> génération, nous nous attacherons à rendre le champ électrique plus uniforme et mieux connu dans le volume réellement utile.

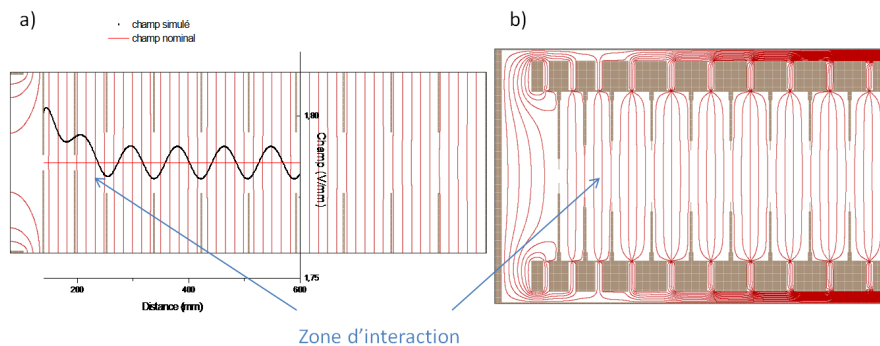


FIGURE 37 – a) Simulation du champ électrique dans la colonne dont la géométrie a été simplifiée. b) Simulation des équipotentielles dans la colonne avec une représentation géométrique plus réaliste. On indique aussi la position de la zone d'interaction dans la colonne.

Nous travaillons parfois avec un champ électrique qui n'est pas uniforme, dans une configuration intéressante dite de « Velocity mapping » [EP97]. Ce montage est constitué de trois plaques polarisées différemment et d'une zone d'expansion en champ électrique nul comme le montre la simulation de la figure 38. Sous l'effet des champs électriques différents, les électrons ont tendance tout d'abord à converger puis à diverger. On choisissant convenablement les tensions appliquées aux bornes des 3 plaques, on peut donner à ce système l'effet d'une lentille. Deux cas singuliers se présentent :

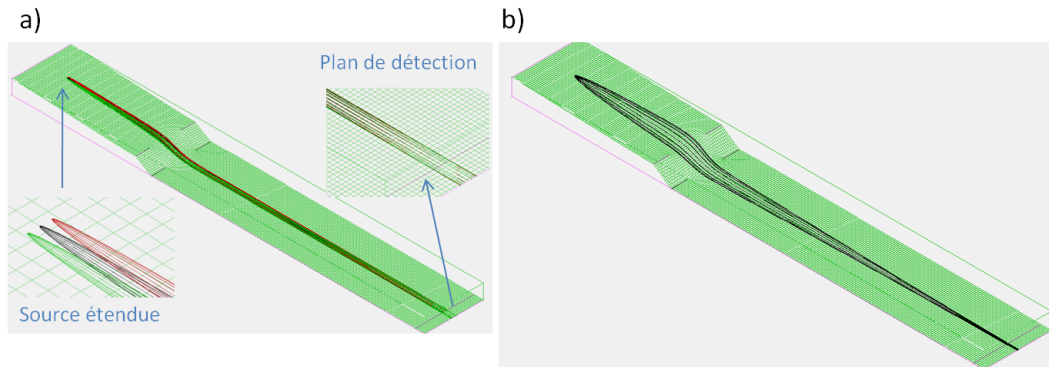


FIGURE 38 – Représentation des potentiels de la colonne lorsque la polarisation n'est pas constante. a) Configuration de « Velocity mapping » b) Imagerie spatiale de la source.

- la lentille permet de focaliser sur le détecteur les photoélectrons émis ayant le même vecteur vitesse initial indépendamment de la position radiale du point d'émission (cf. FIG. 38.a). On s'affranchit alors en partie de la convolution due à l'extension spatiale de la source d'électrons, déterminée par le volume d'interaction laser-jet d'ions. Par contre, le diamètre de la tache sur le détecteur est plus petit ;
- on peut aussi imager la source sur le détecteur, ce qui permet de rassembler les photoélectrons même si leur énergie initiale est très importante, avoisinant quelques centaines de  $\text{cm}^{-1}$  (cf. FIG. 38.b).

Ces deux techniques nous permettent souvent de trouver facilement un premier signal de photo-électrons avant d'effectuer un réglage permettant d'obtenir des interférogrammes.

### 6.3.2 La détection

Durant ces dernières années, nous avons aussi fait évoluer le système de détection. Il repose sur un ensemble de galettes de micro-canaux qui amplifient le signal d'arrivée d'un électron d'un facteur allant de  $10^3$  à  $10^6$  suivant l'empilement utilisé (2 ou 5 galettes) tout en conservant intacte l'information sur la position de l'électron. En sortie de galettes, il faut recueillir le signal d'un nuage électronique centré sur la position du point d'impact initial. Tout d'abord nous utilisions un système commercial où le codage était assuré par la mesure du courant aux quatre coins d'une anode résistive en surface.



L'information était ensuite transmise via une carte d'acquisition à un ordinateur. La fréquence d'acquisition était limitée à 10 kHz. Désormais et afin de pouvoir utiliser un laser impulsionnel (cf. partie 9), le nuage électronique est accéléré vers une plaque de phosphore, puis une caméra CCD munie d'un système optique recueille les photons émis à la suite de la collision du nuage électronique (cf. FIG. 49.a)). Avec ces deux méthodes de codage, on estime la résolution spatiale de la détection à environ  $65 \mu\text{m}$ .

### 6.3.3 Géométrie de l'interaction jet-laser, les flous

Les photo-électrons sont produits à l'intersection du jet d'ions et du faisceau laser qui forme un volume d'interaction. Cette extension spatiale de la source de photoélectrons va brouiller les franges d'interférence si elle est supérieure à l'interfrange à observer. Plus précisément, comme la détection s'effectue dans un plan, il faut que la plus grande dimension transverse de la source dans un plan parallèle à celui de détection soit inférieure à l'interfrange. Pour ce faire, le laser focalisé est dirigé dans une direction perpendiculaire au plan de détection (cf. FIG. 39.c). Notons qu'il a été possible d'obtenir des interférogrammes à une dimension par une excitation transverse [VBD99]. Nous avons aussi constaté que l'on retrouvait dans cette configuration une bonne résolution à deux dimensions en limitant pour ce faire l'extension transverse du jet d'ions par l'insertion de deux fentes le long de son trajet. Cette méthode a pour le moment été abandonnée car en contre-partie, nous mesurons aussi un bruit d'électrons parasites élevé et rédhibitoire. Malgré tout nous envisageons, toujours dans l'optique de réaliser un microscope de 3<sup>ème</sup> génération, d'insérer des fentes réglables dont la position serait pilotable à l'extérieur de la chambre à vide.

En comparaison aux interférogrammes théoriques, différents effets physiques conduisent à réduire la visibilité des franges. Ce flou est de plusieurs natures et affecte différemment le contraste suivant la valeur du champ électrique appliqué :

- le flou dit « spatial » a deux causes : la résolution limitée du détecteur et l'extension de la source. Le contraste reste acceptable pour un waist du laser inférieur à  $70 \mu\text{m}$ . Ce brouillage affecte plus l'extérieur de la tache et il est moins important en champ électrique faible ;
- le flou énergétique est dû à la largeur spectrale du laser (en réalité négligeable en continu) et à la distribution en vitesse du jet d'ions. Par l'intermédiaire de l'effet Doppler, tous les ions ne sont pas détachés avec la même énergie. Une différence de 1% sur la vitesse des ions engendre une dispersion de 20 mk sur les énergies de détachement. La convolution énergétique se traduit par un brouillage préférentiellement au centre de la figure, d'autant moins important que le champ électrique est fort.
- lorsque le jet d'ions est trop intense, les images sont aussi dégradées. On observe ce phénomène lorsque l'intensité du jet dépasse le nanoampère, c'est-à-dire pour des

densités d'ions d'environ  $10^{11}$  ions.m<sup>-3</sup>. On interprète ce brouillage comme un effet de charge d'espace. En effet, pour une telle densité, la distance moyenne entre les ions, inversement proportionnelle à la racine cubique de la densité, est de l'ordre de quelques centaines de  $\mu\text{m}$ . L'énergie d'interaction entre l'électron libre et le plus proche voisin est d'une cinquantaine de mk. Cette énergie, répartie aléatoirement en différents points de photodétachement, suffit à brouiller les interférogrammes. Bien sûr, un traitement plus rigoureux consisterait à évaluer l'énergie d'interaction avec tous les plus proches voisins.

Enfin, il apparaît en général un bruit de fond continu sur le détecteur engendré par la présence d'électrons parasites. Ils peuvent être générés par des collisions entre le jet d'ions négatifs et le gaz résiduel, les plaques de la zone d'interaction ou même les parois de l'enceinte. Dans ce dernier cas, un travail expérimental important conduit à augmenter le rapport signal sur bruit par un pilotage minutieux du jet. Éventuellement, d'autres électrons parasites proviennent de photo-électrons émis à partir de seuils moins énergétiques. On note aussi que les images ne sont pas toujours circulaires. On attribue ces défauts de symétrie à des inhomogénéités de champ électrique le long de la colonne, notamment aux environs du détecteur où les potentiels appliqués pour alimenter les galettes peuvent altérer le champ constant. La tache est déformée mais ceci est sans conséquence sur l'interférogramme construit à proximité de la zone de détachement, où le champ local est mieux défini.

## 7 Spectroscopie des ions négatifs

Une part importante des résultats issus de ce travail expérimental est la détermination de grandeurs spectroscopiques. En premier lieu, il s'agit de l'affinité électronique d'atomes ou de molécules. On peut aussi mesurer des paramètres spectroscopiques comme les constantes de structure fine d'atomes ou d'ions et même des décalages isotopiques d'affinités électroniques. Je vais me contenter de rappeler ici comment nous sommes parvenus maintenant, grâce au microscope de photodétachement, à mesurer avec le plus de précision au monde les affinités électroniques. Je discuterai brièvement le cas des molécules. Je décrirai aussi quelques tentatives expérimentales que nous avons menées afin de nous affranchir d'un facteur limitant, celui de la connaissance du champ électrique appliqué.

## 7.1 Une spectroscopie électronique précise à quelques mk près

### 7.1.1 État de l'art en 2001

De 1999 à 2001, l'équipe de microscopie de photodétachement s'est attachée à développer l'analyse quantitative des interférogrammes afin de mesurer des affinités électroniques grâce au microscope de photodétachement. Ce travail portait en partie sur  $O^-$  [VBD99, BDV01, BDD99],  $Si^-$  et  $F^-$  [BDG01]. La mesure qualitative de l'énergie de l'électron repose sur la grande sensibilité de la phase en fonction de sa valeur. On rappelle que le déphasage au centre de la figure s'exprime simplement comme :

$$\Phi = \frac{4\sqrt{2}}{3} \frac{\sqrt{m}}{\hbar q F} \epsilon^{3/2} \quad (44)$$

où  $F$  est le champ électrique et  $\epsilon$  l'énergie du photoélectron. De manière équivalente, l'ajustement consiste donc à compter le nombre d'anneaux et d'en déduire le facteur  $\epsilon^{3/2}/F$ . Ainsi, cette mesure est indépendante de la taille réelle de la tache et nous n'avons donc pas à connaître précisément l'échelle du système de détection. Connaissant le champ électrique appliqué, on déduit donc de la phase de l'interférogramme l'énergie cinétique de l'électron. Par ailleurs, connaissant la longueur d'onde du laser, on peut en déduire l'affinité électronique (cf. FIG. 39.a). Dans les 4 articles du groupe cités précé-

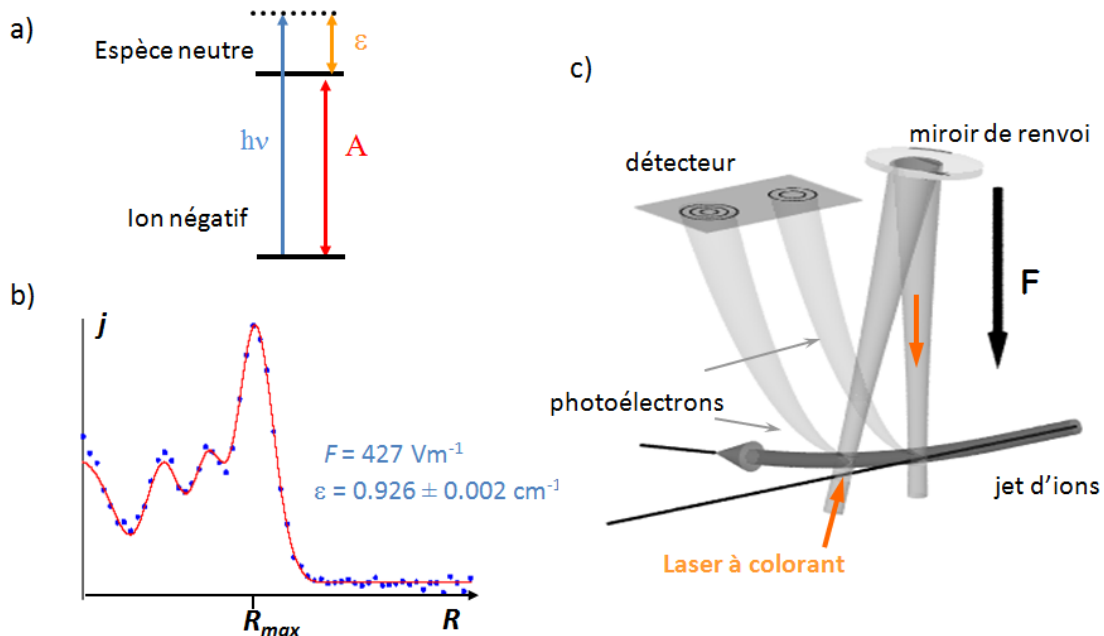


FIGURE 39 – a) Niveaux d'énergie. b) Distribution radiale des photo-électrons et représentation de l'interpolation dont on extrait une valeur de l'énergie. c) Schéma du dispositif expérimental autour de la zone d'interaction. Deux images sont produites par enregistrement grâce à l'utilisation d'un miroir de renvoi concave de rayon 0,85 m.

demment sont discutés en détail comment mesurer des affinités avec le microscope de photodétachement. Les points importants de ce travail sont :

- la mise au point d'un logiciel de traitement des images qui permet d'ajuster les taches expérimentales. Je reporte sur la figure 39.b l'histogramme radial du nombre de photoélectrons comptés par pixel. L'interpolation, qui prend en compte les convolutions spatiales et énergétiques précédemment décrites, est basée sur la formule exacte de la distribution de courant exprimée par la formule (29) et permet de déterminer la valeur de  $\epsilon$ . Pour une valeur du champ électrique fixée, cette procédure d'ajustement conduit à une précision de 2 mk sur l'énergie ;
- afin de construire un interférogramme bien résolu, l'excitation laser a lieu dans la direction du champ électrique et quasiment perpendiculaire au jet d'ions. Cependant, l'angle entre le laser et le champ électrique est mal connu, tout comme l'effet Doppler dû au mouvement rapide des ions négatifs qui en découle. En effet, la fréquence  $\nu'$  du photon dans le référentiel de l'ion est reliée à celle du laboratoire,  $\nu$ , par la relation de l'effet Doppler relativiste  $\nu' = \gamma\nu(1 + \frac{v}{c}\sin\theta)$  où  $v$  est la vitesse du jet d'ions,  $\gamma = (1 - \frac{v^2}{c^2})^{-1/2}$  et  $\theta$  l'angle entre le laser et la normale au jet. Afin de s'affranchir de ce décalage de fréquence et en s'inspirant des techniques déjà utilisées au laboratoire dans le groupe « ions négatifs » [BCD89], on rétro-réfléchit le laser par un miroir sphérique afin d'enregistrer simultanément deux taches. Comme représenté sur la figure 39.c, les deux parties du faisceau n'interceptent pas le jet sous le même angle, on mesure à chaque enregistrement une paire de taches relative à deux énergies de photoélectrons, notées  $\epsilon_i$  pour incidente et  $\epsilon_r$  pour réfléchi. En moyennant les deux énergies mesurées et en analysant les différents angles entre les faisceaux lasers et le jet d'ions lui-même courbé par le champ électrique, on aboutit à une mesure de l'affinité électronique corrigée de l'effet Doppler ;
- enfin une partie du travail a consisté à déterminer la précision des mesures d'affinités électroniques. Trois types d'erreur sont à prendre en compte. La première incertitude, aléatoire, est liée à la dispersion statistique qui sort de la détermination des mesures d'énergie  $\epsilon$  suite à l'interpolation des différentes images et aux corrections Doppler. Cette incertitude dépend du nombre et de la qualité des enregistrements. La deuxième incertitude est causée par la possibilité d'erreurs systématiques fluctuantes d'un enregistrement à l'autre, il peut s'agir de la détermination de la longueur d'onde du laser ou de l'effet Doppler relié à la position des faisceaux. Enfin une troisième incertitude est liée à la possibilité d'erreurs systématiques constantes, telle la détermination du champ électrique. Au final, le résultat de la mesure est donné avec une incertitude de  $\pm 2\sigma$  où  $\sigma$  est l'écart-type (la probabilité d'être dans l'intervalle est de 0,954 pour une distribution gaussienne).

### 7.1.2 Interpolation du champ électrique

Depuis la thèse de F. Goldfarb [Go03], nous prenons en compte un éventuel écart entre le champ électrique nominal  $F$  et le champ électrique réel. Jusqu'alors, l'erreur sur l'énergie était calculée à partir d'une estimation de l'erreur sur le champ électrique. En effet, une erreur  $\delta F$  sur le champ engendre une incertitude  $\delta\epsilon = \frac{2}{3} \frac{\delta F}{F} \epsilon$  sur l'énergie. Afin de connaître  $\delta F$  sur une série d'acquisition, on représente les mesures d'affinités électroniques  ${}^e A(\epsilon)$  en fonction de  $\epsilon$  (cf. FIG. 40). Cette distribution est généralement linéaire :

$${}^e A(\epsilon) = {}^e A + \frac{2}{3} \frac{\delta F}{F} \epsilon = {}^e A + K\epsilon \quad (45)$$

où  ${}^e A$  est l'affinité électronique en champ nul. D'après la relation 45, on peut être tenté de déterminer  ${}^e A$  en se plaçant à énergie quasi-nulle, mais il est toujours nécessaire d'enregistrer au moins un anneau par tache pour en extraire la phase. Les plus faibles énergies accessibles sont d'environ  $0,4 \text{ cm}^{-1}$ .

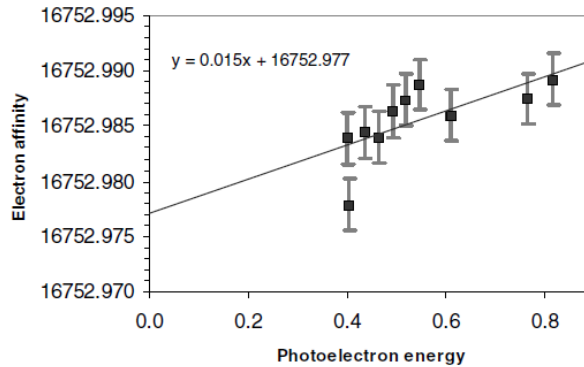


FIGURE 40 – Représentation de l'affinité électronique en fonction de l'énergie cinétique moyenne du photoélectron pour une série de mesures effectuées sur  $S$ . Les unités sont le  $\text{cm}^{-1}$ . Sur cet exemple, la pente ajustée est de  $1,5 \pm 0,5\%$ .

Nous nous autorisons aussi à inclure une contrainte sur la pente  $K$  extraite d'une série de données. Cela nous permet de mieux rendre compte de la réalité. En effet, comme nous l'avons discuté précédemment (cf. FIG. 37), l'incertitude sur le champ électrique comporte une partie systématique constante (la valeur des potentiels, la distance entre les plaques et la valeur des résistances) et une partie fluctuante, liée à la position de la zone d'interaction dans la colonne. Cependant, la variation de place en place du champ électrique est assez limitée ce qui nous conduit à contraindre la valeur de  $K$  autour d'une valeur moyenne  $\langle K \rangle$  avec une dispersion  $\sigma_K$ . La détermination de l'affinité électronique  ${}^e A$  à partir de la relation (45) repose ainsi sur une régression linéaire avec une pente contrainte.

Elément	${}^e A$ (MPD)	Réf.	${}^e A$ (mes. préc.)	Réf.
${}^{32}S$	16 752,974(5)	[BCD05]	16 752,966(8)	[AHH99]
${}^{28}Si$	11 207,246(8)	[BCD05]	11207,24(15)	[SBB98]
${}^{16}O$	11 784,676(7)	[BCD05]	11784,675(6)	Hotop, communication privée
${}^{19}F$	27 432,446(19)	[BDG01]	27 432,440(35)	[BCD89]
${}^{127}I$	24 672,874(29)	[PBD09]	24 672,81(81)	[HG92]
${}^{16}O^1H$	14 740,9824(91)	[GDC05]	14 741,02(3)	[SKL97]
${}^{32}S^1H$	18 669,543(12)	[CDD06]	18688(17)	[BFH81]

TABLE 4 – Affinités électroniques déterminées avec le microscope de photodétachement et la mesure précédente ainsi que les références correspondantes.

### 7.1.3 Synthèse des mesures d'affinités électroniques

La table 4 et le graphe 41 forment une synthèse de nos mesures d'affinités électroniques. Dans la table, je reporte la valeur de différentes affinités mesurées avec le microscope de photodétachement et la détermination précédente la plus précise mais mesurée par une autre méthode. Sur le graphe, je reporte ces deux valeurs pour chaque élément en soustrayant notre mesure d'affinité; l'incertitude est représentée par une barre d'erreur. Pour une comparaison rigoureuse, cela implique que les autres expérimentateurs donnent aussi leur incertitude à  $2\sigma$  près, ce qui n'est pas toujours facile à savoir à la lecture des articles. J'élimine aussi de la discussion le cas de la molécule SH, car la mesure précédant la nôtre était très peu précise, de trois ordres de grandeur moins bonne et même erronée.

Que pouvons-nous conclure du graphe de la figure 41? Tout d'abord que les barres d'erreurs des deux mesures se recouvrent toujours. A cette imprécision près, l'affinité que nous mesurons se situe systématiquement au dessus de la précédente (excepté dans le cas moléculaire). En d'autres termes, la phase issue de l'ajustement correspond à une énergie électronique  $\epsilon$  plus petite. Nous avons bien conscience de l'apparence de ce décalage sans pour autant pouvoir clairement l'expliquer pour le moment.

## 7.2 Microscopie de photodétachement à deux couleurs

Nous avons aussi développé une technique originale de photodétachement à 2 couleurs [DCD07]. Cette méthode a pour but de lever l'incertitude sur le champ électrique, en générant une superposition incohérente des deux systèmes d'anneaux dont les variations peuvent être utilisées comme un « vernier spectral ». En effet, lorsque l'énergie ou le champ électrique varient de telle sorte que le rapport  $\frac{\epsilon^{3/2}}{F}$  reste inchangé, la distribution radiale de courant est la même (cf. FIG. 42.a). D'autre part, en choisissant

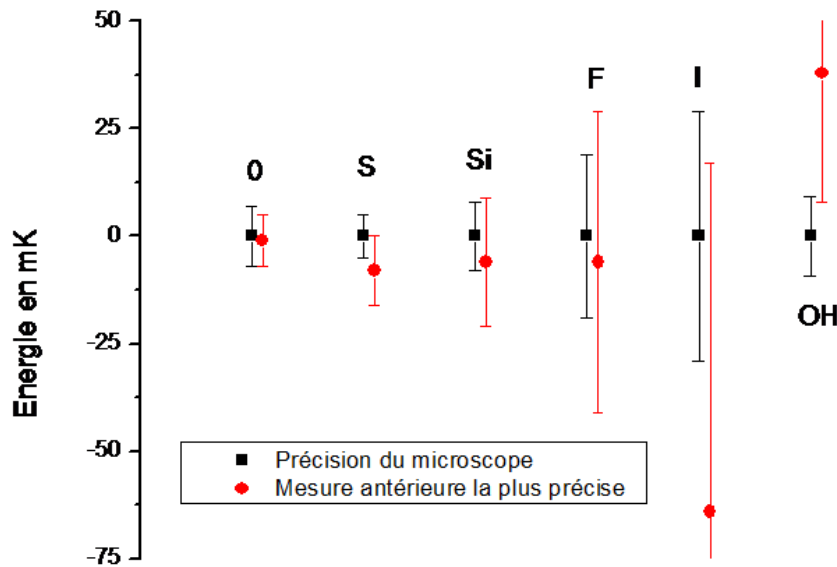


FIGURE 41 – Comparaison entre les affinités électroniques déterminées par notre expérience avec les valeurs mesurées précédemment.

judicieusement deux énergies voisines d'excitation ( $\epsilon_1 = \epsilon + \delta\epsilon$  et  $\epsilon_2 = \epsilon - \delta\epsilon$ ), on enregistre la superposition incohérente de deux interférogrammes tout en gardant une bonne résolution (cf. FIG. 42.b). Dans cette situation, lorsque l'énergie et le champ électrique changent à nouveau dans un rapport  $\frac{\epsilon^{3/2}}{F}$  constant, les interférogrammes enregistrés sont totalement différents (cf. FIG. 42.c). C'est le principe du vernier.

Pour créer l'excitation à deux couleurs, nous avons modulé le laser continu grâce à un cristal électro-optique de  $\text{LiNbO}_3$ . La fréquence de modulation de 2 GHz est produite par un synthétiseur. Cette modulation engendre des bandes latérales dans le spectre de la source dont les intensités relatives sont décrites par des fonctions de Bessel. Après un filtrage spectral utilisant un Fabry-Perot plan-plan, nous créons ainsi deux fréquences lasers séparées de 4 GHz dont l'écart absolu est connu avec une précision excellente, de l'ordre de quelques dizaines de Hz. Avec ce rayonnement à 2 couleurs, nous avons effectué le photodétachement du soufre et enregistré les interférogrammes correspondants (cf. FIG. 43.a). L'utilisation de ce vernier a l'avantage de permettre une mesure de l'affinité sans hypothèse ab-initio sur la valeur précise du champ électrique appliqué. Le dépouillement de 16 images nous conduit à une précision absolue de 31 mk. A deux couleurs, le paramètre  $\chi^2$  de l'ajustement présente un minimum lorsque  $\epsilon$  et  $F$  varient tout en gardant le rapport  $\frac{\epsilon^{3/2}}{F}$  constant (cf. FIG. 43.b). Cette méthode présente quelques inconvénients. Le temps nécessaire à l'ajustement des interférogrammes est beaucoup plus long. De plus, au final, la précision sur l'énergie est moins bonne car la superposition incohérente des deux interférogrammes conduit à rendre la tache plus sensible aux différents flous et moins contrastée.

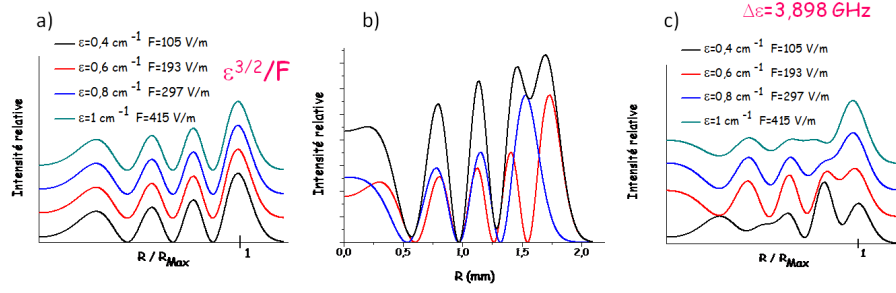


FIGURE 42 – Distribution radiale du courant de photo-électrons : a) spectre mono-énergétique pour différentes valeurs de  $\epsilon$  et  $F$  telles que  $\frac{\epsilon^{3/2}}{F}$  soit constant ; b) en rouge et en bleu sont représentés des distributions pour deux valeurs d'énergie voisine  $\epsilon_1 = \epsilon + \delta\epsilon$  et  $\epsilon_2 = \epsilon - \delta\epsilon$ . En noir, on représente la superposition incohérente de ces distributions ; c) superpositions incohérentes de distributions avec des énergies  $\epsilon_1 = \epsilon + \delta\epsilon$  et  $\epsilon_2 = \epsilon - \delta\epsilon$  pour différentes valeurs de  $\epsilon$  et  $F$  telles que  $\frac{\epsilon^{3/2}}{F}$  soit constant.

Au-delà de l'observation de la superposition incohérente de deux interférogrammes, nous avons envisagé la détection d'interférences cohérentes entre les 4 trajectoires possibles. En effet, pour chaque photon d'excitation, on produit une paire de trajectoires interférant, et les deux paires correspondent à des énergies différentes, mais très voisines. Ces deux énergies engendrent un brouillage temporel, à la fréquence différence, entre les 2 paires de trajectoires. Pour s'affranchir de cet effet de brouillage, il faudrait détecter l'interférogramme de manière synchrone avec la modulation. Dans ce but, nous devons mesurer le temps d'arrivée des électrons, ce qui se fait aisément avec l'anode commune des galettes de micro-canaux qui nous permettent de coder la position spatiale des électrons. Il semble beaucoup plus difficile de coupler cette mesure temporelle à la modulation de 2 GHz, ce qui implique une précision sur la mesure du temps d'une cinquantaine de picosecondes. Il faudrait aussi corrélérer cette information temporelle à la mesure habituelle de position. L'analyse a posteriori des données nous permettrait de mettre en évidence l'interférence des 4 trajectoires électroniques. Ce résultat serait un véritable défi, car aucune interférence entre trajectoires ayant des énergies différentes n'a jamais été observée.

### 7.3 Structure fine - Décalage isotopique d'affinités électroniques

Le soufre est un exemple d'élément que nous avons étudié et qui présente une structure fine aussi bien pour l'ion ( $3p^5, ^2P_{1/2,3/2}$ ) que pour l'atome ( $3p^4, ^3P_{1,2,3}$ ). Les 6 seuils de détachement sont schématisés sur la figure 44. En raison des intensités relatives des transitions et des populations initiales pondérées par la statistique de Boltzman, nous n'avons enregistré des interférogrammes avec un rapport signal sur bruit suffisamment favorable que pour 5 transitions [BCD06]. A partir des mesures ainsi réalisées, nous



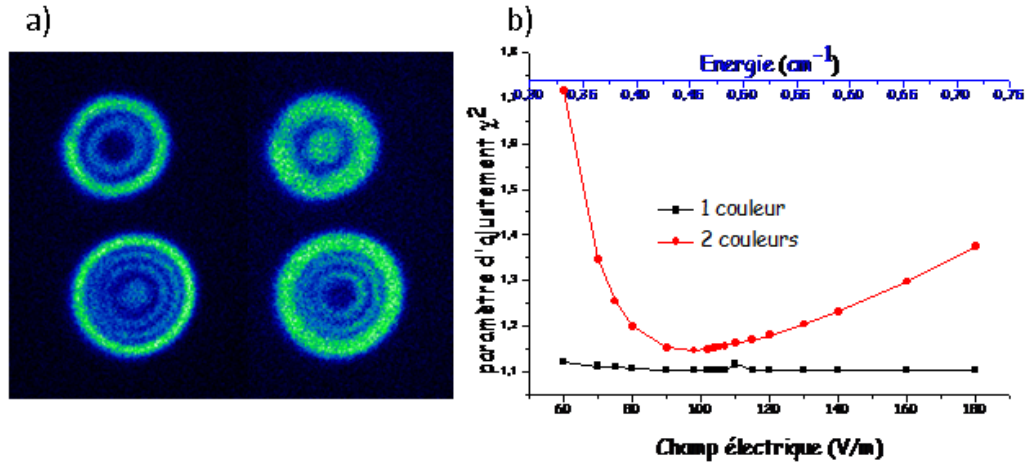


FIGURE 43 – a) Interférogramme à deux couleurs. b) Comparaison de l'évolution du paramètre  $\chi^2$  pour des interférogrammes obtenus à une ou à deux couleurs.

avons pu appliquer analytiquement le principe de combinaison de Ritz qui conduit à déterminer la meilleure interpolation de l'ensemble des paramètres ( $X, Y, Z, eA$ ) montrés sur la figure 44. Nous avons légèrement amélioré la précision sur la valeur de la structure fine de l'atome. L'erreur sur celle de l'ion a été réduite d'un facteur 3.

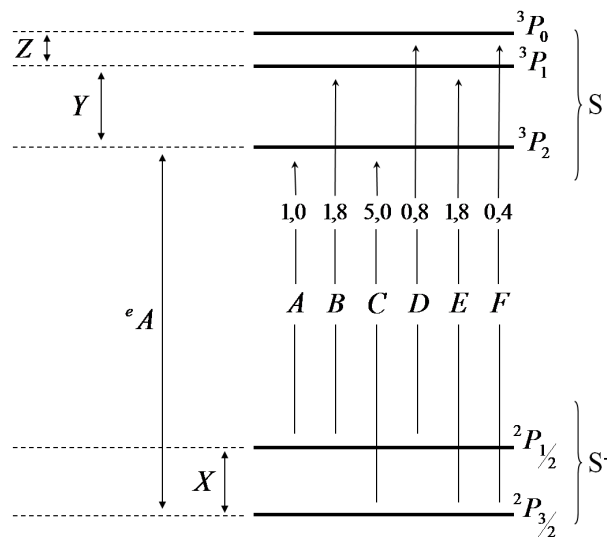


FIGURE 44 – Niveaux d'énergie de  $S^-$  et de  $S$  ainsi que les transitions de photodétachement avec leurs intensités relatives.

Nos mesures d'affinités électroniques permettent aussi de déterminer des écarts isotopiques engendrés par la variation de masse du noyau. De telles mesures ont été réalisées en 2001 sur  $O^-$  [BDV01] et plus récemment sur  $S^-$  [CDS10]. En première approximation,

le hamiltonien de  $Z$  électrons dans le référentiel du centre de masse peut s'écrire :

$$H = \sum_i \frac{\vec{p}_i^2}{2} \underbrace{\left( \frac{1}{m} + \frac{1}{M} \right)}_{=\frac{1}{\mu}} + V \quad (46)$$

où  $V$  représente les interactions électrostatiques,  $m$  la masse d'un électron,  $M$  la masse du noyau et  $\mu$  la masse réduite. Les énergies propres d'un tel hamiltonien sont proportionnelles à  $\mu$ . L'affinité électronique  ${}^eA(M)$ , qui est la différence entre l'énergie du niveau de détachement (à énergie nulle) et celle du niveau fondamental, est aussi proportionnelle à la masse réduite. A ce degré d'approximation, l'affinité de l'atome le plus lourd est toujours plus grande que celle du léger, on parle de « Normal Mass Shift NMS » pour ce décalage de masse normal. A l'ordre supérieur, on ajoute au hamiltonien le terme de polarisation de masse, dont l'opérateur est proportionnel à la somme des produits scalaires croisés des impulsions de deux électrons. Pour des fonctions d'ondes électroniques orthogonales, la valeur moyenne de cet opérateur est nulle. Lorsque l'on tient compte des corrélations électroniques, cette moyenne est différente de zéro et apporte au décalage isotopique une contribution appelée « Specific Mass Shift SMS » pour le décalage de masse spécifique. Ainsi la détermination *ab initio* de décalages isotopiques<sup>11</sup> nécessite de calculer les fonctions d'ondes électroniques, comme le font nos collaborateurs belges (T. Carette, O. Sharf et M. Godefroid) et C. Froese-Fisher par une méthode Hartree-Fock multiconfigurationnelle.

Expérimentalement, la difficulté de ce type d'expérience est de produire le jet d'ions négatifs isotopique et ensuite de le sélectionner en masse. Par exemple, dans le cas d'un jet d'ions de soufre non enrichi, seulement 4% d'entre eux sont présents comme  ${}^{34}\text{S}^-$ . Afin de faire interagir le laser avec ce faible jet (de quelques pA), on règle le filtre de Wien sur la masse  ${}^{32}\text{S}$ . On optimise le recouvrement géométrique du laser et du jet, puis on réduit la valeur du champ électrique du filtre d'un facteur  $4/\sqrt{17}$ . Dans ces conditions et grâce à la résolution suffisante de notre sélection en masse qui assure une réduction du jet d'un facteur 100 à une unité de masse, on ne produit que des photo-électrons issus des ions  ${}^{34}\text{S}$ . Par ailleurs, ces expériences mettent aussi en évidence la sensibilité de notre technique de mesure. Avec l'isotope  ${}^{34}\text{S}$ , nous obtenons au maximum 8 électrons par pixel au bout de 2000 s de temps d'accumulation, ce qui ne nous empêche pas de déterminer un décalage d'affinités à  $\pm 7$  mk près.

Enfin, pour clore cette section, notons que les mesures de structure fine ou de décalages isotopiques peuvent être plus précises que les déterminations des seuils individuels. En effet la comparaison de plusieurs mesures consécutives prises sans changer les réglages, à des énergies voisines, élimine des erreurs systématiques fluctuantes (celle de la mesure de la longueur d'onde, celle causée par la variation de distances entre les

11. J'ai négligé dans cette discussion très qualitative sur les écarts isotopiques d'affinités les effets de volume, appelé « Field Shift » et notés FS.

taches,...). Par ailleurs, l'erreur systématique constante (comme celle associée à la valeur du champ électrique) est la même pour les différents enregistrements. Ainsi pour une même géométrie de colonne, on applique une pente identique aux variations des affinités en fonction de l'énergie des photo-électrons.

## 7.4 Microscopie de photodétachement moléculaire

Depuis 2002, la microscopie de photodétachement a été étendue avec succès aux molécules, notamment sur le radical OH [DGB02]. J'ai pris part à ces expériences afin de déterminer les seuils rotationnels des branches P, Q et R. On montre clairement avec les molécules que la microscopie de photodétachement, contrairement aux mesures de sections efficaces totales par exemple, est très bien adaptée aux éléments qui présentent de nombreux seuils. En effet, la structure interne des molécules fait intervenir des niveaux de rotation (cf. FIG. 45.a). L'ion moléculaire est décrit dans le cas a) de Hund alors que la molécule OH a une structure plus complexe, décrite dans un couplage intermédiaire entre le cas a) et b) de Hund. La molécule OH a été choisie en raison de sa faible masse réduite, donc de sa structure rotationnelle assez grande pour autoriser la résolution des différentes transitions. En raison d'un effet de couplage gyroscopique entre la rotation et le moment cinétique électronique total, chaque niveau rotationnel dégénéré se scinde en 2 composantes de parités opposées pour former le doublet  $\Lambda$ .

L'évolution de la section efficace de détachement de cette molécule en fonction de l'énergie du laser fait apparaître de nombreux seuils (cf. FIG. 45.b). Sur les figures 45.c et 45.d, on reporte les enregistrements d'interférogrammes, à deux dimensions en haut et à une dimension en bas (la distribution radiale), effectués avec une énergie proche du seuil R3(0) de OH, qui est la transition qui correspond à l'affinité électronique de cette molécule. L'énergie d'excitation utilisée sur cet exemple est la même que celle indiquée par une flèche rouge sur la figure 45.b. Dans notre cas, l'identification des niveaux est très simple. Les grands anneaux classiques qui apparaissent correspondent à la branche Q3 de la molécule OH (c'est à dire aux différents niveaux moléculaires de la transition  $\text{OH}^-(X^1\Sigma^+; v=0, N'')$  vers  $\text{OH}(X^2\Pi_{3/2}; v=0, N'=N'')$ ). Au cours d'une campagne de mesures, nous avons précisé l'affinité électronique de OH et effectué de nouvelles mesures des paramètres rotationnels de  $\text{OH}^-$ . Nous avons aussi étendu le calcul relatif des intensités de transition aux différents seuils moléculaires. Par la suite, nous avons également mesuré l'affinité électronique de la molécule SH, en gagnant 3 ordres de grandeur par rapport à la détermination précédente [CDD06]. Ce gain spectaculaire a été notamment possible grâce à la possibilité qu'offre la microscopie de photodétachement d'identifier clairement les seuils moléculaires dus aux différents niveaux de rotation.

L'étude de la microscopie de photodétachement appliquée aux molécules a été initialement motivée par l'exploration de la limite de validité du modèle de l'électron libre.

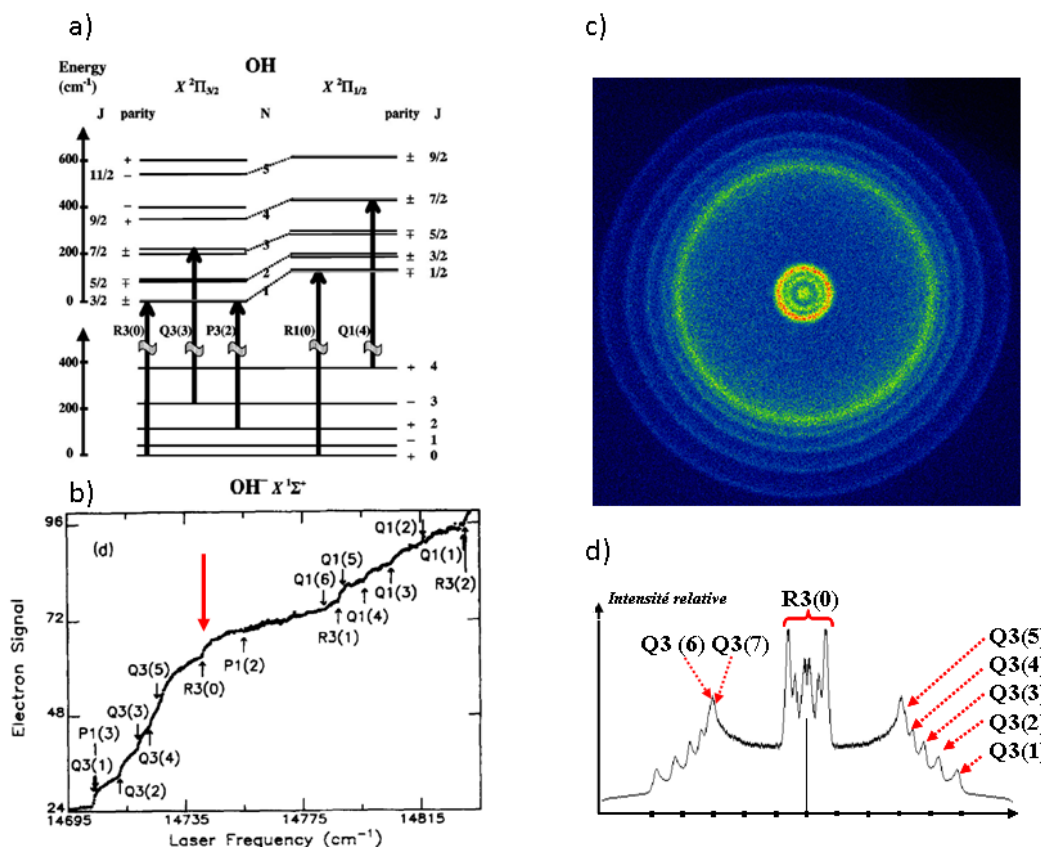


FIGURE 45 – a) Niveaux d'énergie des premiers états rotationnels de OH<sup>-</sup> et de OH, avec l'écart du «  $\Lambda$  doubling » exagéré d'un facteur 50. b) Variation de la section efficace de détachement de OH<sup>-</sup> en fonction de la longueur d'onde du laser (figure tirée de [SMJ82]). c) Enregistrement des positions d'arrivée des photoélectrons détachés juste au dessus du seuil R3(0) à une longueur d'onde de 678,352 nm et un champ électrique de 396 V.m<sup>-1</sup>. d) Idem pour la distribution radiale.

En effet, le terme asymptotique du potentiel créé par le corps neutre varie cette fois en  $1/r^2$  en raison du dipôle moléculaire et peut engendrer des perturbations sur les interférogrammes [Fa02], comme une baisse de contraste. Cependant, nous n'avons enregistré aucune perturbation sur nos images et aucune variation anormale sur nos mesures d'affinités. En réalité, la molécule OH n'est pas tout à fait une molécule polaire comme pourrait le laisser entendre une vision classique. Chaque état de OH est de symétrie déterminée, la valeur moyenne de l'opérateur impair dipolaire électrique est nulle en absence de champ électrique externe. Ainsi, le diagramme Stark de la molécule est quadratique en champ faible puis devient linéaire pour une valeur de champ notée  $F_{pol}$  où le décalage LoSurdo-Stark devient plus important que l'écart du doublet  $\Lambda$ . Dans notre expérience le champ extérieur, au maximum de 500 V.m<sup>-1</sup>, est toujours inférieur à  $F_{pol}$  estimé à 150 kV.m<sup>-1</sup>, ce qui explique que nous n'ayons rien observé. Ce n'est que pour des valeurs de champ électrique supérieures que la molécule devient réellement polaire.

## 8 Microscopie de photodétachement en champ magnétique

### 8.1 Photodétachement en champ magnétique (et éventuellement en champ électrique)

#### 8.1.1 Variation de la section efficace de photodétachement

Tout comme en champ électrique, quelques expériences de mesure des variations de section efficace de photodétachement ont été réalisées en champ magnétique. Les pionniers [BJL78] ont observé des modulations sur les spectres effectués sur S. En champ magnétique, les oscillations reflètent la quantification en une infinité de niveaux de Landau du mouvement transverse des photo-électrons émis dans le continuum. L'écart entre ces niveaux est proportionnel à la fréquence cyclotron  $\Omega_{Cycl.} = 2\Omega_L = \frac{qB}{m}$ , soit pour mémoire 1,4 MHz/G ou environ  $1 \text{ cm}^{-1}/\text{T}$ .  $\Omega_L$  est la fréquence de Larmor. Aux énergies voisines des niveaux de Landau, la section efficace diverge car la possibilité de s'échapper pour le photo-électron est réduite à une dimension, et la densité finale d'état est cette fois proportionnelle à  $1/k_z$  où  $k_z$  est le vecteur d'onde suivant l'axe de quantification  $z$ .

Très souvent, les expériences en champ magnétique ont été réalisées en piège et consistent à mesurer la perte des ions sous l'effet du laser ([EEF87] sur  $\text{Se}^-$ , [PY03] sur  $\text{O}^-$ , [YKB03] sur  $\text{S}^-$  avec un faible champ électrique). A ma connaissance, il n'existe qu'une seule expérience en jet, réalisée par Krause [Kr90] sur l'oxygène afin de déterminer les résonances de Landau sur les sections efficaces. Dans toutes ces références, les résonances sont en réalité très atténuées par des contraintes expérimentales expliquées en détail dans la référence dite « BIL » [BIL79]. Il apparaît autour de chaque niveau de Landau une structure compliquée en raison de la levée de dégénérescence par effet Zeeman des niveaux de l'ion, de l'atome et de l'électron. De plus, dans le référentiel de l'ion dans lequel le processus de photodétachement est décrit, il apparaît un champ électrique motionnel dû au mouvement rapide de l'ion dans le champ magnétique. Le jet d'ion et le champ sont quasiment parallèles mais les faibles composantes transverses suffisent à donner naissance à un champ électrique qui atténue les résonances de Landau par effet Stark, lui aussi dit motionnel. Au vu de ces considérations et suite à de fructueuses discussions avec J. Delos durant son séjour d'un mois au laboratoire en 2008, nous envisageons d'effectuer une expérience en champ magnétique afin de mieux identifier ces résonances. Un montage est en cours de construction, nous appliquerons un champ magnétique de 0,1 T sur un jet de  $\text{S}^-$  d'énergie cinétique de 1,2 keV.

Par ailleurs, le problème du photodétachement en champ magnétique et/ou champ électrique a aussi été un domaine d'investigation important pour les théoriciens. En

général, les travaux portent sur la dépendance spectrale des sections efficaces et le plus souvent sur l'ion  $H^-$ . Différentes géométries de complexité croissante ont été explorées : avec  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  parallèles [Du89], avec  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  perpendiculaires [Fa91,PD93] et enfin avec  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  de direction quelconques mais de module relativement faible [LW97].

### 8.1.2 Un pas vers notre expérience : la répartition spatiale des photoélectrons en champs électrique et magnétique parallèles

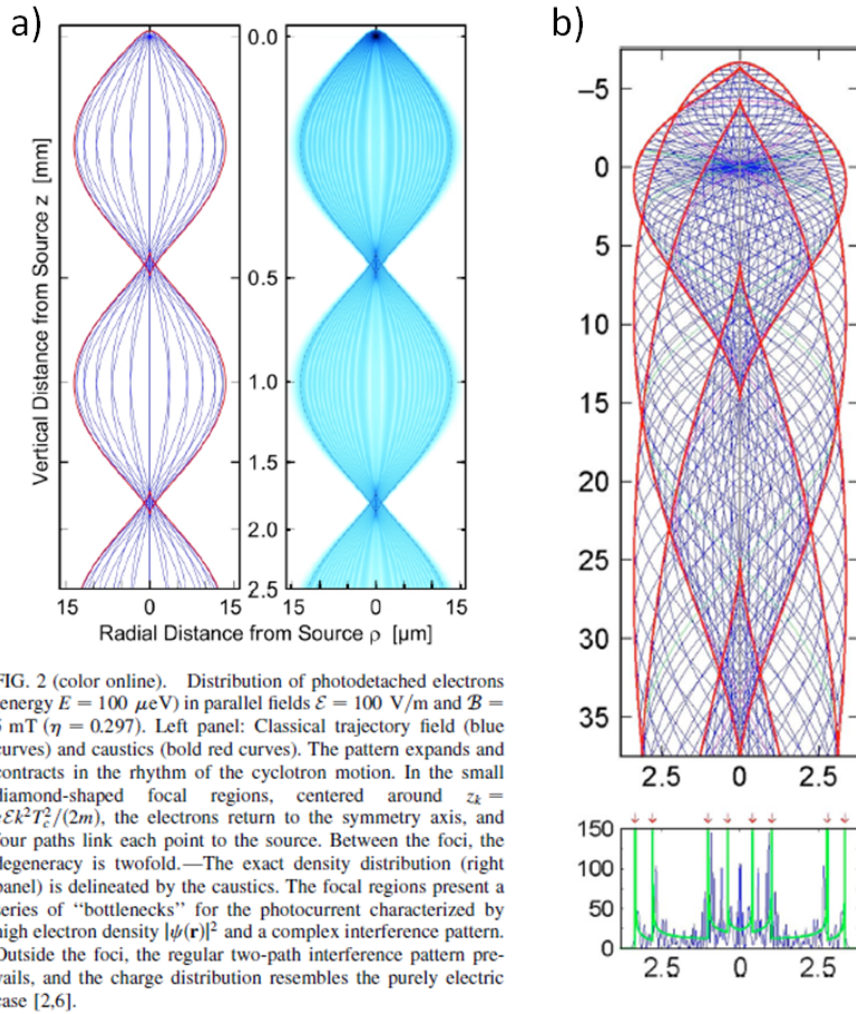


FIGURE 46 – Calcul des trajectoires et de la distribution des photoélectrons dans des champs électrique et magnétique parallèles. a)  $\frac{v_0 B}{F} = 0,297$  ; la figure est issue de [BD06]. b)  $\frac{v_0 B}{F} = 7,908$  ; la figure est issue de [BKD06].

Plus en relation avec nos préoccupations expérimentales, quelques articles traitent du problème de la répartition spatiale des photoélectrons en champ électrique et magnétique parallèles. Dans cette configuration de champ, la fonction de Green d'une particule chargée est déterminée analytiquement [KBK01] ce qui permet de trouver l'expression quantique de la distribution de courant.

Sous l'action d'un champ magnétique assez faible (cf. FIG. 46.a), les trajectoires se refocalisent après des temps  $T_k = 2\pi k/\Omega_{Cycl.}$  où  $k$  est un entier positif. En dehors des zones de refocalisation, l'interférogramme est le même qu'en champ magnétique nul à un facteur de contraction près. Par contre, dans la zone de focalisation, 4 trajectoires peuvent aboutir au même point et interfèrent dans une région délimitée par une nouvelle caustique prenant la forme d'un diamant [BD06]. D'une façon plus générale, l'étude des trajectoires classiques permet à nouveau d'appréhender plus intuitivement le calcul quantique. En champ magnétique plus intense, les trajectoires se compliquent (cf. FIG. 46.b); on dénombre jusqu'à 7 sortes de caustiques différentes [BKD06]. Lorsqu'apparaît une nouvelle caustique, le nombre de trajectoires qui interfèrent augmente de deux en chaque point à l'intérieur de celle-ci. Une approche théorique complémentaire [GYL07] de l'analyse des trajectoires classiques repose sur une représentation dans l'espace des phases, en coordonnées  $\rho - p_\rho$ , et est appliquée au photodétachement en onde p (applicable au cas de  $H^-$ ).

L'étude des trajectoires classiques permet aussi de classer la nature du mouvement des électrons en fonction de la valeur du champ magnétique caractérisée par  $T_k = \frac{2\pi k}{\Omega_{Cycl.}}$ . Ce temps caractéristique est à comparer soit au temps de chute moyen  $\bar{T}$ , soit à la différence extrême des temps de chute entre les trajectoires  $\Delta T$  :

- lorsque  $\Delta T < \bar{T} < T_k$  les deux trajectoires sont supposées être perturbées de façon pratiquement équivalente par la force de Lorentz ;
- lorsque  $\Delta T < T_k < \bar{T}$ , la force de Lorentz agit de façon sensiblement différente sur les trajectoires. C'est dans ce régime qu'apparaît le phénomène de refocalisation en champ parallèle ;
- lorsque  $T_k < \Delta T < \bar{T}$ , l'effet de la force magnétique est bien supérieure à celui de la force électrique et les chemins peuvent devenir très complexes comme décrit sur la figure 46.b, dans le cas de deux champs parallèles.

## 8.2 Expériences en champ magnétique transverse tel que $\Delta T < T < T_k$ , typiquement $|\vec{B}| \approx 1 \mu \text{ T}$

La configuration en champ magnétique transverse, c'est-à-dire perpendiculaire au champ électrique, nous paraissait énigmatique depuis longtemps, même depuis la création du microscope par ses inventeurs qui avaient prévu un blindage en  $\mu$ -métal. En effet d'une part, les trajectoires, qui constituent l'enveloppe de la figure d'interférence, sont déplacées par la force de Lorentz. D'autre part, il apparaît une différence de phase additionnelle à l'origine de l'effet Aharonov-Bohm [AB59], proportionnelle au flux du champ magnétique entre les deux trajectoires ce qui induit un décalage des franges (cf. FIG. 47.a). Pour donner un ordre de grandeur du décalage attendu, on néglige la variation de la forme des trajectoires en champ faible, le déphasage supplémentaire est égal

à  $\delta(\Delta\Phi) = -\frac{q}{\hbar} \oint \vec{A}(\vec{r}) \cdot d\vec{r} = -\frac{q}{\hbar} \int_S \vec{B} \cdot d\vec{S}$ . Dans un champ aussi faible que  $0,05 \mu\text{T}$ , on prévoit un déphasage qui correspond à l'apparition de deux anneaux supplémentaires sur les trajectoires de portée maximale. Au centre, le déphasage ainsi prévu est nul car l'aire entre les trajectoires est aussi nulle. On s'attend donc intuitivement à enregistrer un interférogramme très perturbé, avec de fortes variations de phases qui dépendent de la distance à l'axe.

Pour réaliser l'expérience, nous avons enlevé une chemise de  $\mu$ -métal et monté des bobines magnétiques autour du microscope pour produire un champ de l'ordre de quelques  $\mu\text{T}$  sur l'étendue du parcours des électrons. Comme indiqué sur la figure 47.b nous observons pour un tel champ l'invariance, au déplacement de Lorentz près, du système d'anneaux (enveloppe et franges) [CBD08]. Nous avons aussi vérifié l'invariance de l'affinité électronique du soufre en fonction du champ magnétique.

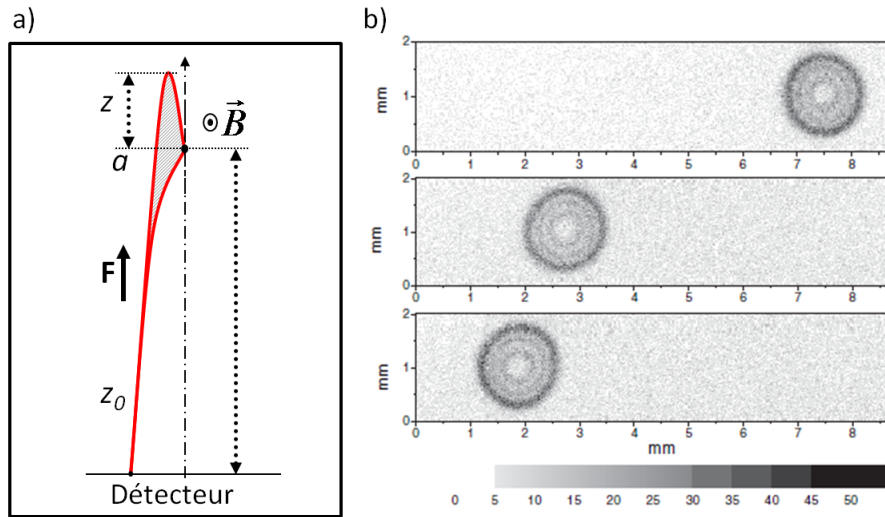


FIGURE 47 – a) Représentation de la présence d'un champ magnétique présent tout le long des trajectoires de l'électron dans le microscope de photodétachement. b) Interférogrammes enregistrés sur les ions  $S^-$  photodétachés par un laser à  $596,88852(3) \text{ nm}$  dans un champ électrique de  $291 \text{ V/m}$  et pour trois valeurs du champ magnétique perpendiculaire (environ  $0, 1,1 \mu\text{T}$  et  $1,3 \mu\text{T}$  de haut en bas).

Cette invariance très claire sur nos images était-elle prévisible ? Avait-elle été démontrée expérimentalement ? Nous avons étudié la bibliographie sur ce sujet en détail [CBD08] et à notre grande surprise nous n'avons trouvé que des informations partielles traitant du comportement d'une particule évoluant dans un champ qui englobe les trajectoires. Une erreur, initialement mentionnée par Boyer [Bo72], a même été commise par Feynman, comme l'illustre la figure 15-7 du tome II de son livre de cours [FLS66]. Dans la référence [Ch60], l'auteur mentionne le déplacement des franges et de l'enveloppe sans démonstration alors que dans les références [Bo73, Ko79], seul l'effet d'une bande de champ magnétique accolée à des fentes est démontré. Sur le front expéri-



mental, il n'y a pas vraiment d'interféromètres de matière qui permettent d'avoir accès clairement à la fois à un déplacement de franges et un déplacement d'enveloppe. Une exception concerne la référence [SST92] où l'interférogramme résulte de la chute d'un nuage d'atomes froids qui traverse deux fentes : les franges et l'enveloppe sont déplacés sous l'effet d'un gradient de champ électrique.

Cette absence de déphasage supplémentaire était-elle évidente ? Pas vraiment. En effet, le déplacement de l'enveloppe résulte de l'intégration de la variation d'impulsion tout au long de la trajectoire. Dans l'approximation où les deux trajectoires 1 et 2 sont remplacées par une trajectoire moyenne  $\vec{r}_{moyen}$ , le déplacement de l'enveloppe en champ faible est  $\delta\vec{r}_{enveloppe} = -\frac{q}{m}\vec{B} \wedge \int \vec{r}_{moyen} dt$ . Le déphasage est quant à lui relié à la différence des impulsions à la fin des trajectoires. La présence du champ magnétique ajoute un déphasage  $\delta\phi$  qui engendre un déplacement de frange  $\delta\vec{r}_{frange}$  tel que  $\delta\Phi + \vec{\nabla}\Phi \cdot \delta\vec{r}_{frange} = 0$ . C. Chaibi et C. Blondel ont démontré que  $\delta\vec{r}_{frange} = \delta\vec{r}_{enveloppe}$  pour toutes particules chargées évoluant dans tout interféromètre à deux ondes (cf. l'annexe de la référence [CBD08]). Cette démonstration repose à nouveau sur le fait que le gradient de l'action réduite est égal à l'impulsion finale.

### 8.3 Expériences en champ magnétique longitudinal tel que $\Delta T < T_k \approx T$ , typiquement $|\vec{B}| \approx 100 \mu \text{ T}$

Comme rappelé ci dessus (cf. FIG. 46), le cas de la microscopie de photodétachement en présence d'un champ magnétique parallèle au champ électrique a été traité théoriquement à plusieurs reprises. Durant le temps de chute  $T$ , il se superpose un mouvement de l'électron dans le plan perpendiculaire à  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$ , ce qui a pour conséquence de refocaliser les trajectoires à des cotes  $z_{foc}$  telles que  $z_{foc} = \frac{qF}{2m}T_k^2$ . Afin de réaliser l'expérience correspondante, un solénoïde a été bobiné et placé à l'intérieur de la chemise en  $\mu$ -métal afin d'appliquer un champ magnétique longitudinal de l'ordre de  $1,2 \times 10^{-4} \text{ T}$  tout le long des trajectoires, avec un module de deux ordres de grandeur plus important que précédemment. Les images enregistrées (cf. FIG. 48.b) ont été confrontées à la théorie et comme prévu, la phase est très robuste vis à vis des variations de champ magnétique ; seule une contraction de l'interférogramme le long de l'axe de symétrie est observée [CBD10]. Nous avons à nouveau testé la robustesse des affinités mesurées avec le microscope en fonction du champ magnétique. Ceci nous a notamment permis de préciser un peu plus la valeur des affinités de O, Si et S car nous utilisions précédemment une formule fautive prenant en compte une correction mineure éventuelle sur l'affinité due à la présence de champ magnétique.

Afin de comparer le modèle théorique en champ longitudinal et les résultats expérimentaux, nous avons effectué quelques considérations supplémentaires :

- comme les champs électrique et magnétique ne sont pas strictement parallèles entre

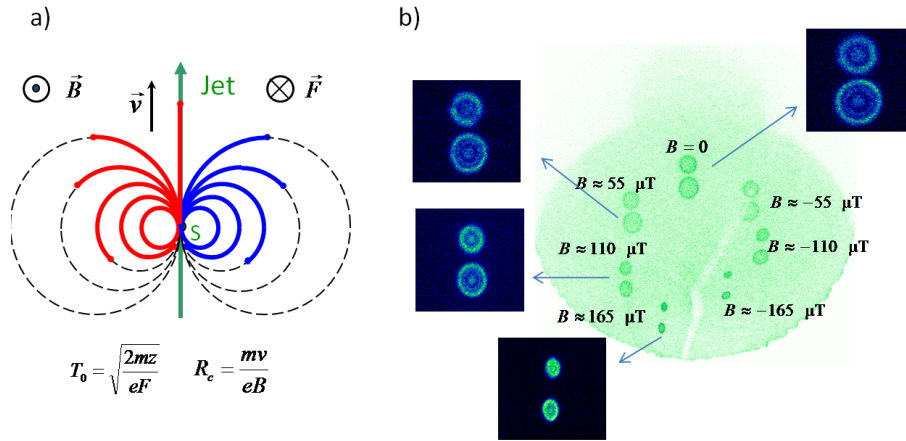


FIGURE 48 – a) Lieu des positions moyennes d'arrivée des électrons en tenant compte de la vitesse d'entraînement en champs électrique et magnétique perpendiculaires. b) Interférogrammes réalisés par photodétachement de  $S^-$  avec un laser de longueur d'onde 596,891 nm dans un champ électrique de  $291 \text{ V.m}^{-1}$ , pour différentes valeurs du champ magnétique longitudinal. La position d'arrivée moyenne diffère de la figure de gauche en partie en raison d'un désalignement entre les champs et de la présence d'un faible champ magnétique transverse résiduel qui modifie la trajectoire des ions.

eux dans l'expérience, nous avons vérifié en utilisant un calcul perturbatif qu'un léger décalage, exprimé sous la forme de l'apparition d'une petite composante transverse, n'ajoutait pas de déphasage. Ce calcul repose sur les propriétés des orbites fermées et l'utilisation de la formule (43) ;

- en raison de la vitesse d'entraînement due aux mouvement des ions négatifs, la trajectoire moyenne des électrons est déviée en présence du champ magnétique. La déviation suit un arc de cercle, de rayon  $R_c = \frac{V_{ion}}{\Omega_{cycl}}$ , en parcourant une longueur  $V_{ion}T$ . La courbe que décrivent les positions moyennes d'arrivée en fonction du champ magnétique est une cochléoïde (cf. la Fig. 48.a).
- de manière plus quantitative, nous avons aussi mesuré le rayon des taches et la distance à l'origine de la position d'arrivée moyenne des électrons en fonction du champ magnétique. Comme attendu, ces deux grandeurs varient proportionnellement à  $\text{sinc}(\frac{\Omega_{cycl}T}{2})$ .

Enfin, à la lecture des travaux théoriques, on peut se demander s'il n'est pas possible d'enregistrer des interférogrammes mettant en jeu plus de 2 trajectoires. Malheureusement, lorsque cette situation se présente, les trajectoires ne se rencontrent que dans des zones très focalisées de l'espace, de dimensions typiquement micrométriques, ce qui excède à l'heure actuelle la résolution des détecteurs en position. Dans la référence [BD06], les auteurs imaginent une géométrie de champ magnétique non uniforme, sans donner plus de précision, qui permettrait d'agrandir la figure d'interférence au niveau du détecteur.

## 9 Photodétachement en régime impulsionnel

Ces derniers temps, nous nous sommes consacrés à la mise au point de la microscopie de photodétachement en régime pulsé. La possibilité d'utiliser des lasers pulsés offre deux avantages : les lasers impulsionnels se prêtent aisément aux opérations non linéaires de multiplication et de mélange de fréquences, ce qui permet de changer beaucoup plus facilement de seuil ou d'ions et même d'atteindre des seuils excités ; de plus, l'excitation pulsée offre la possibilité de transition non linéaire dans l'ion lui-même en atteignant le régime d'excitation multiphotonique. L'expérience en champ électromagnétique intense a aussi été pour nous l'occasion d'étudier l'influence sur les interférogrammes de l'effet pondéromoteur qui apparaît dans ce régime.

### 9.1 Montage expérimental

Le laser utilisé pour cette expérience, ainsi que les développements requis pour sa mise au point, sont décrits précédemment dans le manuscrit dans la partie 3.3. Cette source est assez sophistiquée, car la nécessité d'avoir une onde électronique cohérente impose d'utiliser un laser pulsé monomode. La largeur spectrale du laser injecté que nous avons construit, limitée par transformée de Fourier, est suffisamment faible avec des impulsions dont la durée n'est pas plus courte qu'une dizaine de nanosecondes. D'autre

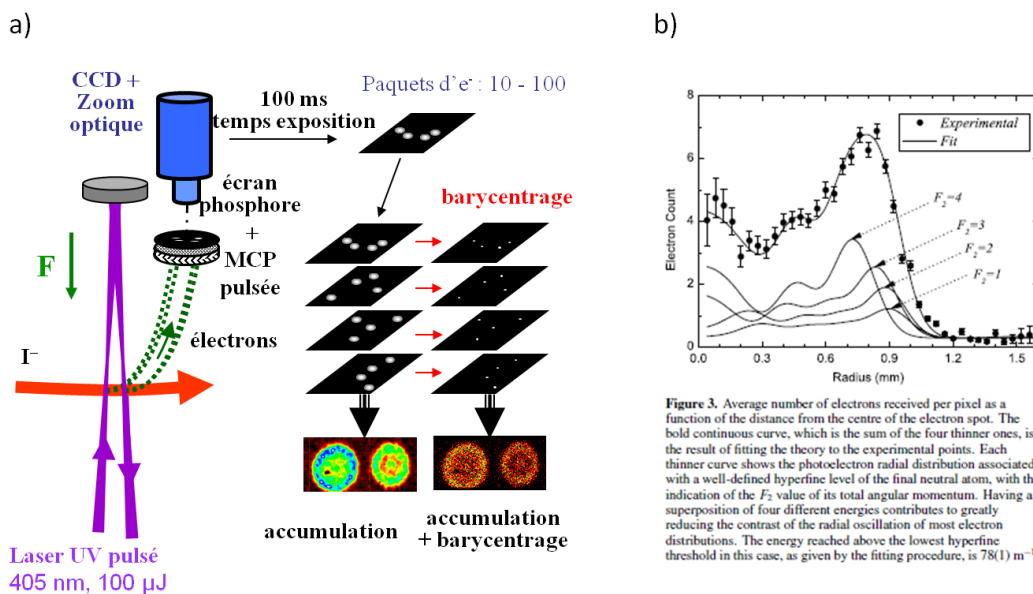


FIGURE 49 – a) Schéma représentant la détection et l'acquisition pour l'expérience de photodétachement en régime pulsé. b) Distribution des photoélectrons dans le cas de l'iode (d'après nos travaux reportés dans [PBD09]).

part, nous avons mis en service un nouveau type de détecteur d'électrons, constitué de galettes de micro-canaux et d'une plaque contenant du phosphore. La lumière verte émise

par cette dernière lors de l'impact électronique est recueillie par un système d'optique et une caméra numérique. Contrairement au détecteur précédent à anode résistive, ce nouveau système d'acquisition nous permet d'enregistrer les positions d'arrivée de plusieurs électrons à la fois, typiquement entre 10 et 100. Un travail important, que nous devons à R. Pelaez, a parallèlement consisté à développer des outils informatiques d'acquisition et de traitement des images (cf. FIG. 49.a). A chaque tir laser, on enregistre une image qui code la position d'arrivée d'un paquet d'électrons. On peut éventuellement relever le barycentre de l'impact lumineux afin de gagner en résolution.

## 9.2 Affinité électronique de l'iode

Quelques tests ont été menés sur les halogènes, dont les affinités électroniques se situent dans le domaine spectral du laser Ti :Sa doublé en fréquence. Les premières images ont été produites à partir d'un jet d'ions négatifs d'iode, relativement intense, éclairé avec une lumière de longueur d'onde d'environ 405 nm. La réjection du bruit de fond permanent et le gain notable en rapport signal à bruit qui en découle ont été obtenus grâce à la synchronisation de l'impulsion laser et de la tension appliquée aux galettes de micro-canaux. Dans le cas de l'iode, l'analyse des interférogrammes est rendue difficile par la présence d'une structure hyperfine de l'état atomique fondamental ; nous observons la superposition de 4 interférogrammes ce qui dégrade le contraste de l'image (cf. FIG. 49.b). Malgré tout, nous avons amélioré avec cette nouvelle technique la mesure de l'affinité électronique de l'iode de plus d'un facteur 2 [PBD09].

Cette campagne de mesure a été pour nous l'occasion de discuter en détail des erreurs commises lorsque l'on mesure une affinité électronique avec un laser pulsé. En plus des incertitudes habituelles, l'énergie à laquelle le photodétachement se réalise est moins bien connue. En effet, nous mesurons la longueur d'onde du laser continu pour connaître celle du pulsé, mais il peut y avoir un décalage de  $\pm 20$  MHz entre les deux. A cela s'ajoute une éventuelle dérive de la fréquence durant l'impulsion, qui d'après nos mesures n'excède pas 20 MHz. Enfin de façon plus fondamentale, la durée finie de l'impulsion, de 15 ns, implique une largeur spectrale d'environ 10 MHz. Au final, la longueur d'onde du laser pulsé n'est connue qu'à  $\pm 125$  MHz près.

## 9.3 Effet pondéromoteur

Dans une onde électromagnétique de fréquence  $\omega$ , l'électron subit un mouvement d'oscillation forcé. Il acquiert ainsi une énergie cinétique moyenne appelée potentiel pondéromoteur  $U_p$  qui s'exprime facilement en fonction du champ électrique oscillant par un calcul classique :

$$U_p = \frac{q^2 E^2}{4m\omega^2} \quad (47)$$

Si on exprime  $\lambda$  la longueur d'onde du laser en  $\mu\text{m}$  et l'intensité du laser  $I$  en  $\text{W}/\text{cm}^2$ , alors  $U_p[\text{cm}^{-1}] = 7,53 \times 10^{-10} \lambda^2 [\mu\text{m}^2] \times I [\text{W}.\text{cm}^{-1}]$ . Dans un calcul quantique, on montre que ce décalage en énergie est égal à l'effet Stark dans la limite des hautes fréquences. Le rôle de ce potentiel pondéromoteur est bien connu dans le domaine de la photoïonisation en champ fort [BFB87]. L'énergie  $\epsilon$  apportée par le photon au dessus du seuil se transforme en partie en énergie cinétique  $\epsilon'$  diminuée de l'énergie pondéromotrice  $U_p$ .

La signature de l'effet pondéromoteur sur les spectres de photodétachement se traduit par un changement de seuil apparent en fonction de la puissance du laser. Cet effet a été partiellement mis en évidence en 1987 [SFM87] et a été plus clairement observé en 1993 [DWM93], avec des mesures de sections efficaces totales dans des gammes d'énergies d'électrons libres supérieures au meV. Notons que dans un champ qui varie temporellement, le potentiel pondéromoteur n'est pas conservatif. Ainsi, lorsque l'on souhaite mesurer son effet sur l'énergie cinétique des photo-électrons, il est nécessaire de prendre en compte leur éventuelle réaccélération sous l'effet du gradient du potentiel. En général, si le temps pris par l'électron pour quitter l'intérieur du faisceau laser est bien plus long que la durée de l'impulsion lumineuse (dans le régime fs par exemple), alors l'énergie du photoélectron est changée de la quantité  $U_p$ . A contrario, si l'électron quitte le laser avant que l'impulsion ne soit éteinte, il subit la réaccélération et au final, son énergie cinétique est inchangée.

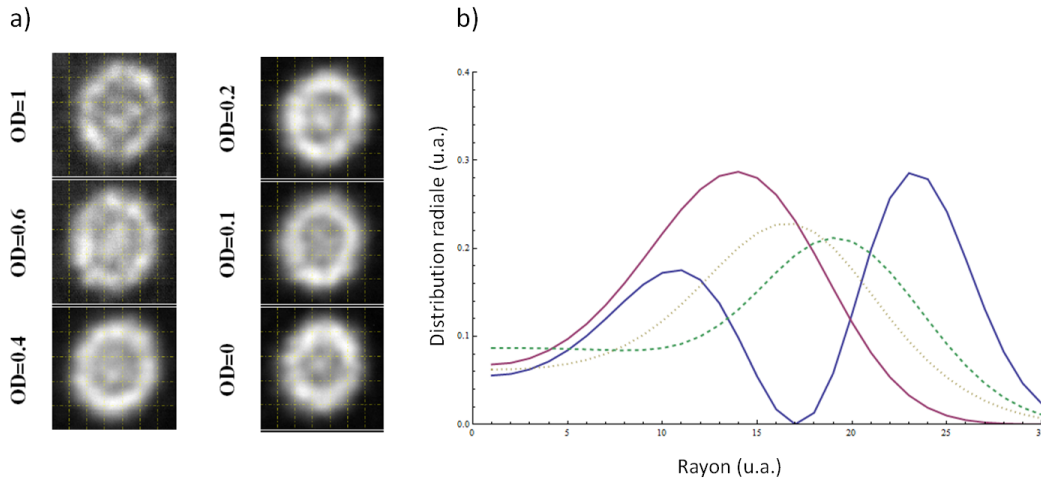


FIGURE 50 – a) Images de photodétachement réalisées dans un champ électrique de 388 V/m pour une longueur d'onde du laser d'environ 848,52 nm et pour différentes densités optiques. Pour  $OD=0$ , l'énergie de l'impulsion est de 3,7 mJ. b) Calcul des distributions radiales de photo-électrons pour une énergie de l'impulsion de 1 mJ avec un waist de 70  $\mu\text{m}$ . En bleu : sans effet pondéromoteur ; en rouge : avec effet pondéromoteur égal à  $U_p(0)$  ; en tiretés verts : en prenant en compte la distribution spatiale de l'intensité ; en pointillés jaunes : en prenant en compte la distribution spatio-temporelle de l'intensité.

Pour étudier l'éventuel effet pondéromoteur sur la microscopie de photodétachement,

nous avons choisi l'oxygène négatif. D'une part, les interférogrammes ont déjà été bien étudiés en continu, leur structure est simple (les niveaux de structure fine sont bien séparés). D'autre part le potentiel pondéromoteur, négligeable dans le cas de l'iode car l'énergie des impulsions bleues était de quelques centaines de  $\mu\text{J}$ , est plus important pour l'oxygène car la fréquence du laser n'étant pas doublée, l'intensité par impulsion est environ dix fois supérieure. De plus, la longueur d'onde de détachement est proche de 848 nm, et le module du potentiel pondéromoteur, variant avec la longueur d'onde au carré, est 4 fois plus important dans le rouge que dans le bleu. Les premières images obtenues sont reportées sur la figure 50.a où l'unité d'énergie lumineuse est quantifiée par la valeur d'une densité optique placée sur le trajet du faisceau. Pour la densité optique nulle ( $\text{OD}=0$ ), l'énergie par impulsion du laser est de 3,7 mJ. On observe clairement sur ces images que le nombre d'anneaux augmente lorsque la valeur de la densité optique croît, c'est-à-dire lorsque l'intensité de l'impulsion diminue. En champ fort, l'interférence se construit avec une énergie réduite du potentiel pondéromoteur. Ici on observe une conséquence du potentiel pondéromoteur sous une excitation lumineuse dans le régime nanoseconde, car le déphasage se construit sur l'orbite fermée en quelques centaines de picosecondes.

L'analyse quantitative de ces interférogrammes est en cours. Nous devons notamment développer un programme d'ajustement spécifique qui prend en compte le décalage pondéromoteur sur les interférogrammes. En effet, la distribution spatio-temporelle gaussienne de l'impulsion du laser se traduit par un brouillage des franges car sous cet éclairage, la source de photo-électrons est étendue. De plus, l'effet pondéromoteur dépend aussi du profil spatio-temporel du faisceau :

$$U_p = U_p(0) \exp\left[-2\frac{x^2 + y^2}{w_0^2}\right] \exp\left[-\frac{t^2}{\tau^2}\right] \quad (48)$$

où  $w_0$  est le waist du laser et  $\tau$  la largeur temporelle caractéristique de l'impulsion. Ainsi, les photo-électrons produits au centre de l'impulsion sont moins énergétiques que ceux formés sur les ailes du faisceau. Cette dépendance spatio-temporelle de l'effet pondéromoteur intervient dans l'argument de la fonction d'Airy. Au final, la distribution radiale de courant mesurée dans le plan de détection est moins contrastée, comme le montrent les modélisations préliminaires réalisées à 1 dimension (cf. FIG. 50.b).

## 10 Perspectives : Microscopie de photodétachement vers de nouveaux états

En guise de perspectives, je vais décrire quelques expériences que nous souhaiterions mener avec le microscope de photodétachement dans les prochaines années. Une voie

de recherche prometteuse est de produire de nouveaux types d'états par photodétachement. En effet, les ions et atomes utilisés jusqu'à présent ont tous des propriétés de parité telles qu'ils libèrent un électron pair sous l'effet de l'absorption d'un photon dipolaire électrique. Une autre situation plus riche est celle où l'électron est libéré avec un moment cinétique non nul. D'autre part, les atomes produits lors des différentes mesures d'affinités électroniques étaient toujours dans leur état fondamental. Afin de mettre en évidence des effets de rediffusion par le coeur atomique, nous souhaiterions utiliser le microscope avec des atomes produits dans des états très excités. En effet, un coeur excité a toutes les chances d'être plus polarisable qu'un coeur fondamental. La perturbation des interférogrammes par le coeur conférerait à la microscopie de photodétachement les qualités d'une véritable microscopie électronique interne de l'atome neutre.

## 10.1 La microscopie de photodétachement produisant un électron de moment cinétique orbital non nul

Le détachement à moment angulaire non nul est un défi pour notre expérience. En effet, des calculs des interférogrammes attendus ont été menés par Christian Bracher, Tobias Kramer and Manfred Kleber [BKK03] et les auteurs ont montré que ce type de détachement offre un degré de liberté supplémentaire dans la mesure où les distributions angulaires deviennent sensibles à l'état de polarisation de la lumière excitatrice (cf. FIG. 51.b). Une façon d'obtenir des électrons impairs est de produire le détachement à un

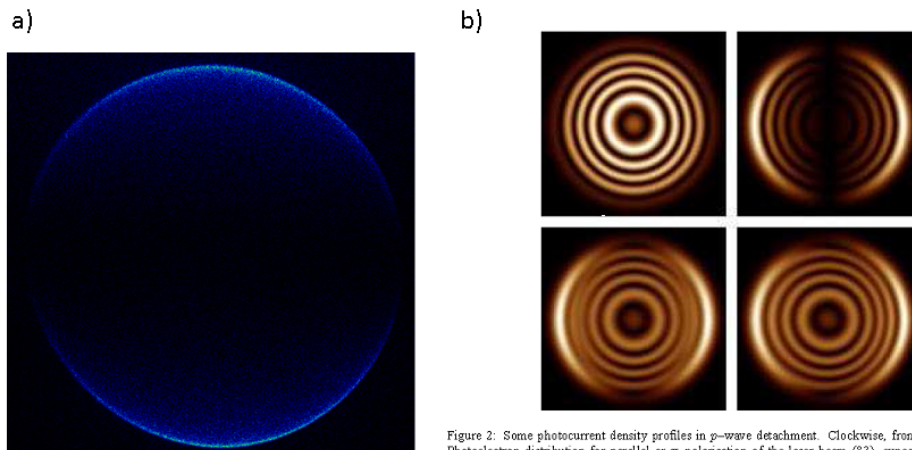


Figure 2: Some photocurrent density profiles in  $p$ -wave detachment. Clockwise, from left upper image: Photoelectron distribution for parallel or  $\pi$ -polarisation of the laser beam (83), expected distribution for perpendicular or  $\sigma$ -polarization (84), profile for circular polarization (85), and linear polarization, tilted under  $45^\circ$  from the direction of field (86). The area displayed in each image is  $1.2 \text{ mm} \times 1.2 \text{ mm}$ . Parameters: Source-screen distance  $z = 0.514 \text{ m}$ , initial electronic energy  $E = 60.8 \text{ } \mu\text{eV}$ , electric field strength  $E = 116 \text{ V/m}$ .

FIGURE 51 – a) Photodétachement de l'ion  $\text{Au}^-$  à  $532 \text{ nm}$  dans un champ d'environ  $350 \text{ V/m}$ . La polarisation rectiligne du laser est perpendiculaire au champ électrique permanent. b) Simulations des interférogrammes avec un électron se détachant en onde  $p$  pour différentes polarisations du laser (figure issue de [BKK03]).

photon d'un électron initialement pair, donc émis dans une onde impaire. A basse énergie

au-dessus du seuil de détachement, l'effet centrifuge confine cette émission dans une onde  $p$ . Comme tests préliminaires, nous avons effectué le détachement classique, c'est-à-dire à énergie importante au-dessus du seuil, de l'ion  $\text{Au}^-$  avec un laser émettant à 532 nm (cf. FIG. 51.a). Cependant, plus près du seuil, la faiblesse du signal nous a empêchés d'observer des interférences. En effet, le photodétachement en onde  $p$  se caractérise par la petitesse des sections efficaces, qui ne croissent à partir de zéro que proportionnellement à la puissance  $3/2$  de l'énergie atteinte au-dessus du seuil, contre  $1/2$  pour l'onde  $s$ . Afin de s'affranchir de la faiblesse de ces sections efficaces, comme nous l'avons déjà partiellement testée sur  $\text{Au}^-$ , on peut réaliser la réaction de photodétachement dans une cavité résonante optique, où la puissance lumineuse stockée peut être importante. Enfin une autre façon de produire par photodétachement des électrons impairs, est d'avoir recours, dans un système où l'ion négatif et l'atome sont de parités opposées, à l'absorption d'un nombre pair de photons. Disposant d'une puissance du laser pulsé suffisante pour provoquer le détachement à deux photons, on peut par exemple produire des électrons impairs avec des halogénures, dont on peut facilement former un faisceau relativement intense et stable.

## 10.2 Photodétachement en laissant l'atome dans un état excité : perspectives sur les alcalins et exemple de P

Un effet très intéressant susceptible d'être observé avec le microscope de photodétachement est la rediffusion de l'onde électronique par le coeur. Le calcul des interférogrammes présenté jusqu'alors repose sur le modèle de l'électron libre. Cependant, l'onde réfléchie par le champ électrique, contrairement à l'onde électronique émise directement vers le détecteur, retransverse une région de l'espace où l'atome neutre est présent. Il existe peu de prédictions théoriques actuellement qui traitent de la conséquence de cet effet sur les interférogrammes. Fabrikant [Fa02] a prédit une baisse de contraste des franges enregistrées en présence d'un moment dipolaire créé par une molécule (cf. partie 7.4).

Une autre façon d'accentuer l'éventuelle rediffusion par le coeur est de laisser l'atome dans un état excité. D'une part, il s'agit d'une situation où des résonances apparaissent comme en témoignent les observations sur les spectres de sections efficaces d'alcalins négatifs (résonances de forme) [PHK74, BHH95]. D'autre part, par un raisonnement très qualitatif, on peut se poser la question de l'effet d'un coeur constitué d'un atome de Rydberg où l'électron externe explore une grande région de l'espace. En effet, la taille de l'orbite liée de l'électron dans un état excité croît avec le carré du nombre quantique principal : une valeur de  $n=30$  suffit à créer une orbite de taille micrométrique dont l'extension est de l'ordre de grandeur du paramètre  $a$ , la distance de remontée de l'électron libre sous l'effet du champ électrique. Pour un tel atome de Rydberg, rappelons aussi que le moment dipolaire est très important, variant en  $n^2$ . Dans une telle situation,



sans connaître réellement le détail de l'effet sur les interférogrammes, on peut espérer que le mouvement de l'électron détaché soit perturbé par l'atome excité. Un calcul d'ordre de grandeur sur  $K^-$  permet de vérifier que le photodétachement d'un état de Rydberg ayant comme nombre quantique principal  $n=30$  est tout à fait accessible avec un laser Ti :Sa pulsé triplé en fréquence, l'énergie requise étant d'à peu près  $34.000 \text{ cm}^{-1}$ .

Dans cette optique, afin de vérifier la faisabilité de la microscopie de photodétachement avec des états atomiques excités, nous avons réalisé des premiers essais avec un laser continu sur  $K^-$  [ASK00], selon la réaction  $K^- + h\nu (\approx 585,4 \text{ nm}) \longrightarrow e^-(\epsilon, s) + K^*(^4P_{3/2})$ . Malheureusement, nous n'avons pas été capables de produire un jet d'ions assez intense pour fabriquer des photoélectrons issus de cette réaction détectables avec notre système d'imagerie. Par pragmatisme, nous avons basculé sur  $P^-$  pour lequel notre source d'ions fonctionne plus intensément. De plus, la longueur d'onde du laser est similaire à la précédente. La réaction de photodétachement est cette fois :  $P^- + h\nu (\approx 580 \text{ nm}) \longrightarrow e^-(\epsilon, s) + P^*(2D)$ . Nous avons obtenu avec succès les premiers signaux et enregistré des interférogrammes qui sont en cours de dépouillement.

Enfin la possibilité de former des atomes de Rydberg par photodétachement est assujétie aux variations de section efficace de la réaction. Ce type de transition semble peu probable, car il s'agit avec un photon à la fois d'arracher un électron à l'ion négatif et de porter l'atome dans un état très excité. En réalité, même pour atteindre le premier état excité<sup>12</sup> comme nous l'avons réalisé sur P, cette difficulté apparaît déjà. L'excitation des deux électrons n'est possible avec les ions négatifs qu'en raison de l'importance des corrélations électroniques. En effet, un opérateur monoélectronique ne peut agir sur deux électrons sauf si ces états ne sont pas tout à fait orthogonaux. L'étude des probabilités de transition vers des états très excités sera une étape indispensable pour l'aboutissement de la microscopie de photodétachement d'états de Rydberg, susceptible de mettre en évidence des effets dus à la structure de l'atome.

---

12. A regarder de plus près les états du P, nous nous sommes rendus compte que nous n'opérons pas à un changement de configuration électronique, mais seulement à un changement de terme spectral.

## Références

- [AB59] Y. Aharonov and D. Bohm, *Significance of electromagnetic potentials in the quantum theory*, Physical Review **115**, no. 3 (1959), 485–491.
- [ADS91] G. Alvarez, R.J. Damburg and H.J. Silverstone, *Photoionization of atomic hydrogen in an electric field*, Physical Review A **44**, no. 5 (1991), 3060–3082.
- [AHH99] T. Andersen, H.K. Haugen and H. Hotop, *Binding energies in atomic negative ions : III*, Journal of Physical and Chemical Reference Data **28** (1999), 1511.
- [Al94] G.D. Alton, *High-intensity, heavy negative ion sources based on the sputter principle (invited)*, Review of Scientific Instruments **65** (1994), 1141.
- [ALW47] E.C. Anderson, W.F. Libby, S. Weinhouse, A.F. Reid, A.D. Kirshenbaum and A.V. Grosse, *Natural radiocarbon from cosmic radiation*, Physics Review **72** (1947), no. 10, 931–936.
- [And04] T. Andersen, *Atomic negative ions : structure, dynamics and collisions*, Physics Reports **394** (2004), no. 4, 157.
- [An09] P. Andersson, *Laser photodetachment of negative ions*, Thèse, University of Gothenburg, 2009.
- [ASK00] K.T. Andersson, J. Sandström, I.Y. Kiyani, D. Hanstorp and D.J. Pegg, *Measurement of the electron affinity of potassium*, Physical Review A **62** (2000), no. 2, 22503 [5 pages].
- [BBD01] C. Blondel, S. Berge and C. Delsart, *Physical and unphysical phases of uniformly accelerated particles*, American Journal of Physics **69** (2001), 810–816.
- [BBG98] C. Bracher, W. Becker, S.A. Gurvitz, M. Kleber and M.S. Marinov, *Three-dimensional tunneling in quantum ballistic motion*, American Journal of Physics **66** (1998), 38.
- [BBG05] R.C. Bilodeau, J.D. Bozek, N.D. Gibson, C.W. Walter, G.D. Ackerman, I. Dumitriu and N. Berrah, *Inner-shell photodetachment thresholds : Unexpected long-range validity of the Wigner law*, Physical Review Letters **95** (2005), no. 8, 83001 [3 pages].
- [BC94] S.J. Buckman and C.W. Clark, *Atomic negative-ion resonances*, Reviews of Modern Physics **66** (1994), no. 2, 539–655.
- [BCD85] C. Blondel, R.-J. Champeau and C. Delsart, *Photoionisation laser spectroscopy of ytterbium atoms in the presence of a DC electric field*, Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics **18** (1985), 2403–2422.
- [BCD89] C. Blondel, P. Cacciani, C. Delsart and R. Trainham, *High-resolution determination of the electron affinity of fluorine and bromine using crossed ion and laser beams*, Physical Review A **40** (1989), 3698–3701.

- [BCD05] C. Blondel, W. Chaibi, C. Delsart, C. Drag, F. Goldfarb and S. Kröger, *The electron affinities of O, Si, and S revisited with the photodetachment microscope*, The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics **33** (2005), 335–342.
- [BCD06] C. Blondel, W. Chaibi, C. Delsart and C. Drag, *Fine structure of S and S<sup>-</sup>*, Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics **39** (2006), no. 2, 1409–1416.
- [BD06] C. Bracher and J.B. Delos, *Motion of an electron from a point source in parallel electric and magnetic fields*, Physical Review Letters **96**, no. 10 (2006), 100404 [4 pages].
- [BDD96] C. Blondel, C. Delsart and F. Dulieu, *The Photodetachment Microscope*, Physical Review Letters **77** (1996), 3755–3758.
- [BDD99] C. Blondel, C. Delsart and F. Dulieu, *Photodetachment microscopy of O<sup>-</sup>*, The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics **5** (1999), no. 2, 207–216.
- [BDG01] C. Blondel, C. Delsart and F. Goldfarb, *Electron spectrometry at the  $\mu\text{eV}$  level and the electron affinities of Si and F*, Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics **34** (2001), L281.
- [BDK05] C. Bracher, J.B. Delos, V. Kanellopoulos, M. Kleber and T. Kramer, *The photoelectric effect in external fields*, Physical Letters A **347**, no. 1-3 (2005), 62–66.
- [BDV01] C. Blondel, C. Delsart, C. Valli, S. Yiou, M. Godefroid and S. Van Eck, *Electron affinities of <sup>16</sup>O, <sup>17</sup>O, <sup>18</sup>O, the fine structure of <sup>16</sup>O<sup>-</sup>, and the hyperfine structure of <sup>17</sup>O*, Physical Review A **64** (2001), 052504 [14 pages].
- [BF54] L.M. Branscomb and W.D. Fite, *Photodetachment of the hydrogen negative ion*, Physical Reviews **93** (1954), 651.
- [BFB87] P.H. Bucksbaum, R.R. Freeman, M. Bashkansky and T.J. McIlrath, *Role of the ponderomotive potential in above-threshold ionization*, Journal of the Optical Society of America B **4** (1987), no. 5, 760–764.
- [BFH81] F. Breyer, P. Frey, P. and H. Hotop, *High resolution photoelectron spectroscopy of negative ions : Rotational transitions in laser-photodetachment of OH-, SH-, SD-*, Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei **300** (1981), no. 4, 7–24.
- [BGH67] B. Brehm, M.A. Gusinow and J.L. Hall, *Electron affinity of helium via laser photodetachment of its negative ion*, Physical Review Letters **19** (1967), 737–741.

- [BH00] R.C. Bilodeau and H.K. Haugen, *Experimental Studies of  $Os^-$  : Observation of a Bound-Bound Electric Dipole Transition in an Atomic Negative Ion*, Physical Review Letters **85** (2000), no. 3, 534–537.
- [BH01] R.C. Bilodeau, M. Scheer and H.K. Haugen, *Electron affinity of Bi using infrared laser photodetachment threshold spectroscopy*, Physical Review A **64** (2001), no. 2, 24501 [3 pages].
- [BHH95] U. Berzinsh, G. Haeffler, D. Hanstorp, A. Klinkmüller, E. Lindroth, U. Ljungblad and D.J. Pegg, *Resonance Structure in the  $Li^-$  Photodetachment Cross Section*, Physical Review Letters **74** (1995), 4795–4798.
- [BIL79] W.A.M. Blumberg, W.M. Itano and D.J. Larson, *Theory of the photodetachment of negative ions in a magnetic field*, Physical Review A **19** (1979), no. 1, 139–148.
- [BJL78] W.A.M. Blumberg, R.M. Jopson and D.J. Larson, *Precision laser photodetachment spectroscopy in magnetic fields*, Physical Review Letters **40** (1978), no. 20, 1320–1323.
- [BKD06] C. Bracher, T. Kramer and J.B. Delos, *Electron dynamics in parallel electric and magnetic fields*, Physical Review A **73**, no. 6 (2006), 62114 [21 pages].
- [BKK03] C. Bracher, T. Kramer and M. Kleber, *Ballistic matter waves with angular momentum : Exact solutions and applications*, Physical Review A **67**, no. 4 (2003), 43601 [20 pages].
- [Bl95] C. Blondel, *Recent experimental achievements with negative ions*, Physica Scripta **58** (1995), 31–42.
- [BLN03] C. Bordas, F. Lépine, C. Nicole and M.J.J. Vrakking, *Semiclassical description of photoionization microscopy*, Physical review A **68** (2003), no. 1, 12709 [13 pages].
- [BMS87] H.C. Bryant, A. Mohagheghi, J.E. Stewart, J.B. Donahue, C.R. Quick, R.A. Reeder, V. Yuan, C.R. Hummer, W.W. Smith, S. Cohen and others, *Observation of motional-field-induced ripples in the photodetachment cross section of  $H^-$* , Physical Review Letters **58** (1987), no. 23, 2412–2415.
- [Bo72] T.H. Boyer, *Misinterpretation of the Aharonov-Bohm Effect*, American Journal of Physics **40** (1972), 56–59.
- [Bo73] T.H. Boyer, *Classical electromagnetic deflections and lag effects associated with quantum interference pattern shifts : considerations related to the Aharonov-Bohm effect*, Physical Review D **8** (1973), no. 6, 1679–1693.
- [Bo98] C. Bordas, *Classical motion of a photoelectron interacting with its ionic core : Slow photoelectron imaging*, Physical review A **58** (1998), no. 1, 400–410.

- [Br99] C. Bracher, *Quantum ballistic motion and its applications*, Thèse, Technische Universität München, 1999.
- [BS55] L.M. Branscomb and S.J. Smith, *Experimental Cross Section for Photodetachment of Electrons from  $H^-$  and  $D^-$* , Physical Review **98** (1955), no. 4, 1028–1034.
- [BSG92] M.C. Baruch, W.G. Sturru, N.D. Gibson and D.J. Larson, *Electric-field effects in photodetachment from  $Cl^-$  and  $S^-$  ions in a microwave field*, Physical Review A **45** (1992), 2825–2832.
- [BSH99] R.C. Bilodeau, M. Scheer, H.K. Haugen and R.L. Brooks, *Near-threshold laser spectroscopy of iridium and platinum negative ions : Electron affinities and the threshold law*, Physical Review A **61** (1999), 12505 [7 pages].
- [BSH01] R.C. Bilodeau, M. Scheer and H.K. Haugen, *Control of Near-Threshold Detachment Cross Sections via Laser Polarization*, Physical Review Letters **87** (2001), no. 14, 143001 [4 pages].
- [CBD08] W. Chaibi, C. Blondel, C. Delsart and C. Drag, *Do fringes and trajectories shift equally in matter-wave interferometers? The example of photodetachment microscopy in a magnetic field*, Europhysics Letters **82** (2008), no. 1, 20005 [5 pages].
- [CBD10] W. Chaibi, C. Blondel, C. Delsart and C. Drag, *Effect of a magnetic field in photodetachment microscopy*, The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics **58** (2010), no. 1, 29–37.
- [CCT96] D. Calabrese, A.M. Covington, J.S. Thompson, R.W. Marawar and J.W. Farley, *Near-threshold infrared photodetachment of  $Al^-$  : A determination of the electron affinity of aluminum and the range of validity of the Wigner law*, Physical Review A **54** (1996), no. 4, 2797–2804.
- [CDD06] W. Chaibi, C. Delsart, C. Drag and C. Blondel, *High precision measurement of the  $^{32}SH$  electron affinity by laser detachment microscopy*, Journal of Molecular Spectroscopy **239** (2006), no. 1, 11–15.
- [CDS10] T. Carette, C. Drag, O. Scharf, C. Blondel, C. Delsart, C. Froese Fischer and M. Godefroid, *Isotope shift in the Sulfur electron affinity : observation and theory*, Physical Review A **81** (2010), no. 4, 42522 [10 pages].
- [Ch60] R.G. Chambers, *Shift of an electron interference pattern by enclosed magnetic flux*, Physical Review Letters **5** (1960), no. 5, 3–5.
- [Ch06] W. Chaibi, *Microscopie de photodétachement : rôle du gradient de champ électrique et effet du champ magnétique*, Thèse, Université Paris XI, U.F.R. scientifique d’Orsay, 2006.

- [CMC79] J. Cachenaout, C. Man, P. Cerez, A. Brillet, F. Stoeckel, A. Jourdan and F. Hartmann, *Description and accuracy tests of an improved lambdameter*, *Revue de Physique Appliquée* **14** (1979), no. 6, 685–688.
- [DCD07] C. Drag, W. Chaibi, C. Delsart and C. Blondel, *Two-colour laser excitation as a way to set an absolute energy scale in photodetachment-microscopy based electron spectrometry*, *Optics Communications* **275** (2007), no. 1, 190–195.
- [DD88a] M.L. Du and J.B. Delos, *Effect of closed classical orbits on quantum spectra : Ionization of atoms in a magnetic field. I. Physical picture and calculations*, *Physical Review A* **38** (1988), no. 4, 1896–1912.
- [DD88b] M.L. Du and J.B. Delos, *Photodetachment of  $H^-$  in an electric field*, *Physical Review A* **38** (1988), no. 11, 5609–5616.
- [DD88c] M.L. Du and J.B. Delos, *Effects of Closed Classical Orbits on Quantum Spectra : Ionizations of Atoms in a Magnetic Fields*, *Physical Review A* **58** (1988), no. 17, 1731–1733.
- [DDA90] D.A. Dahl, J.E. Delmore and A.D. Appelhans, *SIMION PC/PS2 electrostatic lens design program*, *Review of Scientific Instruments* **61** (1990), 607.
- [DFS93] N.Y. Du, I.I. Fabrikant and A.F. Starace, *Electric-field effects on  $H^-$  photodetachment with excitation of  $H$  ( $n=2$ )*, *Physical Review A* **48** (1993), no. 4, 2968–2979.
- [DGB02] C. Delsart, F. Goldfarb and C. Blondel, *Molecular photodetachment microscopy*, *Physical Review Letters* **89** (2002), no. 18, 183002 [4 pages].
- [DS76] F.I. Dalidchik and V.Z. Slonim, *Strong exchange interaction effects in a homogeneous electric field*, *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics* **43** (1976), 25.
- [Du89] M.L. Du, *Photodetachment spectra of  $H^-$  in parallel electric and magnetic fields*, *Physical Review A* **40** (1989), no. 3, 1330–1339.
- [Du96] F. Dulieu, *Photodétachement d'ions négatifs d'halogènes : distributions angulaires multiphotoniques en polarisation elliptique ; microscopie au seuil dans un champ électrique uniforme*, Thèse, Université Paris XI, U.F.R. scientifique d'Orsay, 1996.
- [DWM93] M.D. Davidson, J. Wals, H.G. Muller, and Van Linden van den Heuvell, *Observation of full ponderomotive shift for the photodetachment threshold in a strong laser field*, *Physical Review Letters* **71** (1993), 2192–2195.
- [EEF87] R.E. Elmquist, C.J. Edge, G.D. Fletcher D.J. and Larson, *Observation of resolved Zeeman thresholds in photodetachment in a magnetic field*, *Physical Review Letters* **58** (1987), no. 4, 333–336.

- [EL79] P.C. Engelking W.C. and Lineberger, *Laser photoelectron spectrometry of  $Fe^-$  : The electron affinity of iron and the « nonstatistical » fine-structure detachment intensities at 488 nm*, Physical Review A **19** (1979), no. 1, 149–155.
- [EP97] A.T.J.B. Eppink and D.H. Parker, *Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses : Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen*, Review of Scientific Instruments **68** (1997), 3477.
- [Fa80] I.I. Fabrikant, *Interference effects in photodetachment and photoionization of atoms in a homogeneous electric field*, Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics **52** (1980), 1045.
- [Fa89a] I.I. Fabrikant, *Rescattering of photodetached electrons in a Stark field*, Physical Review A **40** (1989), no. 5, 2373–2377.
- [Fa89b] J.W. Farley, *Photodetachment cross sections of negative ions : The range of validity of the Wigner threshold law*, Physical Review A **40** (1989), no. 11, 6286–6292.
- [Fa91] I.I. Fabrikant, *Near-threshold photodetachment of  $H^-$  in parallel and crossed electric and magnetic fields*, Physical Review A **43** (1991), no. 1, 258–265.
- [Fa94] I.I. Fabrikant, *Photodetachment from the  $S^-$  and  $Cl^-$  ions in a static electric field and low-energy electron scattering by  $S$  and  $Cl$  atoms*, Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics **27** (1994), 4545–4557.
- [Fa02] I.I. Fabrikant, *Rescattering of photodetached electrons from a polar molecule in a static electric field : Spatial distribution*, Physical Review A **66** (2002), no. 1, 10703 [4 pages].
- [FBH78] P. Frey, F. Breyer and H. Holop, *High resolution photodetachment from the rubidium negative ion around the  $Rb$  ( $5p_{1/2}$ ) threshold*, Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics **11** (1978), L589–L594.
- [FCW10] A. Fischer, C. Canali, U. Warring, A. Kellerbauer and S. Fritzsche, *First Optical Hyperfine Structure Measurement in an Atomic Anion*, Physical Review Letters **104** (2010), no.7, 73004 [4 pages].
- [FEB78] R.R. Freeman, N.P. Economou, G.C. Bjorklund and K.T. Lu, *Observation of electric-field-induced resonances above the ionization limit in a one-electron atom*, Physical Review Letters **41** (1978), no. 21, 1463–1467.
- [FLS66] Feynman, R.P. and Leighton, R.B. and Sands, M., *The Feynman lectures on physics*, Reading, Massachusetts (1966).
- [Fi53] W.L. Fite, *Production of Negative Ions and Noise in Negative Ion Beams*, Physical Review **89** (1953), no. 2, 411–415.

- [GDC05] F. Goldfarb, C. Drag, W. Chaibi, S. Kröger, C. Blondel and C. Delsart, *Photodetachment microscopy of the P, Q, and R branches of the OH<sup>-</sup> (v=0) to OH (v=0) detachment threshold*, The Journal of chemical physics **122** (2005), 014308.
- [GDL93] N.D. Gibson, B.J. Davies and D.J. Larson, *p-wave photodetachment in a static electric field*, Physical Review A **48** (1993), no. 1, 310–320.
- [GGM01] N.D. Gibson, M.D. Gasda, K.A. Moore, D.A. Zawistowski and C.W. Walter, *p-wave photodetachment in a static electric field*, Physical Review A **64** (2001), no. 6, 61403 [4 pages].
- [Go80] H. Goldstein, *Classical mechanics, second edition*, Addison-Wesley Publishing Compagny (1980).
- [Go03] F. Goldfarb, *Microscopie de photodétachement de Si<sup>-</sup> et OH<sup>-</sup>. Spectroscopie  $\mu\text{eV}$  par imagerie de fonction d'onde pour un test de validité du modèle de l'électron libre*, Thèse, Université Paris XI, U.F.R. scientifique d'Orsay, 2003.
- [GYL07] S. Gao, G.C. Yang, S.L. Lin and M.L. Du, *Electron flux distributions in photodetachment of H-in parallel electric and magnetic fields*, The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics **42** (2007), no. 2, 189–196.
- [HG92] D. Hanstorp and M. Gustafsson, *Determination of the electron affinity of iodine*, Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics (1992), no. 25, 1773.
- [HHK96] G. Haeffler, D. Hanstorp, I. Kiyan, A.E. Klinkmüller, U. Ljungblad and D.J. Pegg, *Electron affinity of Li : A state-selective measurement*, Physical Review A **53** (1996), no. 6, 4127–4131.
- [HKR96] G. Haeffler, A.E. Klinkmüller, J. Rangell, U. Berzinsh and D. Hanstorp, *The electron affinity of tellurium*, Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters **38** (1996), no. 3, 211–214.
- [HL73] H. Hotop and W.C. Lineberger, *Dye-laser photodetachment studies of Au, Pt, PtN, and Ag*, The Journal of Chemical Physics **58** (1973), 2379.
- [HL75] H. Hotop and W.C. Lineberger, *Binding energies in atomic negative ions*, J. Phys. Chem. Ref. Data **4** (1975), no. 3, 539–576.
- [HL85] H. Hotop and W.C. Lineberger, *Binding energies in atomic negative ions. II*, J. Phys. Chem. Ref. Data **14** (1985), 731.
- [HRB65] J.L. Hall, E.J. Robinson and L.M. Branscomb, *Laser Double-Quantum Photodetachment of I<sup>-</sup>*, Physical Review Letters **14** (1965), no. 25, 1013–1016.



- [JP75] P. Juncar and J. Pinard, *A new method for frequency calibration and control of a laser*, Optics communications **14** (1975), no. 4, 438–441.
- [KBK01] T. Kramer, C. Bracher and M. Kleber, *Four-path interference and uncertainty principle in photodetachment microscopy*, Europhysics Letters **56** (2001), 471.
- [KBK02] T. Kramer, C. Bracher and M. Kleber, *Matter waves from quantum sources in a force field*, Journal of Physics A : Mathematical and General **35** (2002), 8361–8372.
- [Ko79] D.H. Kobe, *Aharonov-Bohm effect revisited*, Annals of Physics **123** (1979), no. 2, 381–410.
- [KO90] V.D. Kondratovich and V.N. Ostrovsky, *Resonance and interference phenomena in the photoionization of a hydrogen atom in a uniform electric field. IV. Differential cross sections*, Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics **23** (1990), 3785.
- [Kr90] H.F. Krause, *Observation of Landau resonances well above threshold in a high-resolution ( $\Delta f = 70$  MHz) laser photodetachment study of  $O^-$* , Physical Review Letters **64** (1990), no. 15, 1725–1728.
- [Kr03] T. Kramer, *Matter waves from localized sources in homogeneous force fields*, Thèse, Technische Universität München, Universitätsbibliothek, 2003.
- [LDB81] T.S. Luk, L. DiMauro, T. Bergeman and H. Metcalf, *Continuum Stark Spectroscopy*, Physical Review Letters **47** (1981), no. 2, 83–86.
- [LKB79] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, *Interpretation of Electric-Field-Induced Oscillations in the Cross Section of a One-Electron Atom above the Ionization Limit*, Physical Review Letters **45** (1979), no. 13, 921–924.
- [LML91] K.R. Lykke, K.K. Murray and W.C. Lineberger, *Threshold photodetachment of  $H^-$* , Physical Review A **43** (1991), no. 11, 6104–6107.
- [LW70] W.C. Lineberger and B.W. Woodward, *High Resolution Photodetachment of  $S^-$  Near Threshold*, Physical Review Letters **25** (1970), no. 7, 424–427.
- [LW97] Z.Y. Liu and D.H. Wang, *Analyzing the photodetachment cross section of  $H^-$  in electric and magnetic fields with arbitrary orientation*, Physical Review A **55** (1997), no. 6, 4605–4608.
- [Ma96] H.S.W. Massey, *Negative ions, 3rd Edition*, London : Cambridge University Press (1976).
- [MD56] G. Möllenstedt and H. Düker, *Beobachtungen und Messungen an Biprisma-Interferenzen mit Elektronenwellen*, Zeitschrift für Physik A : Hadrons and Nuclei **145** (1956), no.3, 377–397.

- [MG96] G. Miecznik and C.H. Greene, *Calculation of near-threshold  $O^-$  photodetachment, including fine-structure effects*, Physical Review A **53** (1996), no. 5, 3247–3252.
- [Mi83] R. Middleton, *A versatile high intensity negative ion source*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **214** (1983), no. 2-3, 139–150.
- [Mi89] R. Middleton, *A negative-ion cookbook*, University of Pennsylvania (1989).
- [NOV02] C. Nicole, H.L. Offerhaus, M.J.J. Vrakking, F. Lépine and C. Bordas, *Photoionization microscopy*, Physical Review Letters **88** (2002), no. 13, 133001 [4 pages].
- [NSR00] C. Nicole, I.Sluimer, F.Rosca-Pruna, M. Warntjes, M. Vrakking, C. Bordas, F. Texier and F. Robicheaux, *Slow Photoelectron Imaging*, Physical Review Letters **85** (2000), no. 19, 4024–4027.
- [OMa65] T.F. O'Malley, *Effect of long-range final-state forces on the negative-ion photodetachment cross section near threshold*, Physical Review **137** (1965), 1668–1672.
- [OMB10] S.M. O'Malley and D.R. Beck, *Lifetimes and branching ratios of excited states in  $La^-$ ,  $Os^-$ ,  $Lu^-$ ,  $Lr^-$ , and  $Pr^-$* , Physical Review A **81** (2010), no.3, 32503 [7 pages].
- [ONL02] H.L. Offerhaus, C. Nicole, F. Lepine, C. Bordas, F. Rosca-Pruna and M.J.J. Vrakking, *A magnifying lens for velocity map imaging of electrons and ions*, Review of scientific instruments **72** (2002), 3245.
- [PAB96] V.V. Petrunin, H.H. Andersen, P. Balling, and T. Andersen, *Structural properties of the negative calcium ion : Binding energies and fine-structure splitting*, Physical review letters **76** (1996), no. 5, 744–747.
- [PBD09] R.J. Pelaez, C. Blondel, C. Delsart and C. Drag, *Pulsed photodetachment microscopy and the electron affinity of iodine*, Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics **42** (2009), no. 1, 125001.
- [PD93] A.D. Peters and J.B. Delos, *Photodetachment cross section of  $H^-$  in crossed electric and magnetic fields. I. Closed-orbit theory*, Physical review letters **47** (1993), no. 4, 3020–3035.
- [Pe04] D.J. Pegg, *Structure and dynamics of negative ions*, Reports on Progress in Physics **67** (2004), no. 6, 857–905.
- [PHK74] T.A. Patterson, H. Hotop, A. Kasdan, D.W. Norcross and W.C. Lineberger, *Resonances in Alkali Negative-Ion Photodetachment and Electron Affinities of the Corresponding Neutrals*, Physical Review Letters **32** (1974), no. 5, 189–192.

- [PS93] C. Pan and A.F. Starace, *Relative photoionization and photodetachment cross sections for particular fine-structure transitions with application to Cl 3s-subshell photoionization*, Physical Review A **47** (1993), no. 1, 295–304.
- [PTC87] D.J. Pegg, J.S. Thompson, R.N. Compton, and G.D. Alton, *Evidence for a stable negative ion of calcium*, Physical Review Letters **59** (1987), no. 20, 2267–2270.
- [PY03] D.M. Pendergrast and J.N. Yukich, *Observed Landau structure in photodetachment from trapped  $O^-$* , Physical Review A **67** (2003), no. 2, 062721 [5 pages].
- [RF71] A.R.P. Rau and U. Fano, *Theory of photodetachment near fine-structure thresholds*, Physical review A **4** (1971), no. 5, 1751–1759.
- [RW88] A.R.P. Rau and H.Y. Wong, *Electric-field-induced modulations in photodetachment*, Physical Review A **37** (1988), no. 2, 632–635.
- [SBB98] M. Scheer, R.C. Bilodeau, C.A. Brodie and H.K. Haugen, *Systematic study of the stable states of  $C^-$ ,  $Si^-$ ,  $Ge^-$ , and  $Sn^-$  via infrared laser spectroscopy*, Physical Review A **58** (1998), no. 4, 2844–2856.
- [SBH98] M. Scheer, R.C. Bilodeau and H.K. Haugen, *Evidence for a stable negative ion of calcium*, Physical review letters **80** (1998), no. 12, 2562–2565.
- [Sc05] L.S. Schulman, *Techniques and applications of path integration*, Wiley New York (2005).
- [SFM87] R. Trainham, G.D. Fletcher, N.B. Mansour and D.J. Larson, *Photodetachment threshold shift in a strong laser field*, Physical Review Letters **59** (1987), no. 20, 2291–2294.
- [SG08] O. Scharf and M.R. Godefroid, *On the fine structure photodetachment intensities using the irreducible tensorial expression of second quantization operators*, Arxiv preprint arXiv :0808.3529.
- [SKL97] J.R. Smith, J.B. Kim, J.B. and W.C. Lineberger, *High-resolution threshold photodetachment spectroscopy of  $OH^-$* , Physical Review A **55** (1997), no. 3, 2036–2043.
- [SMJ82] P.A. Schulz, R.D. Mead, P.L. Jones and W.C. Lineberger,  *$OH^-$  and  $OD^-$  threshold photodetachment*, The Journal of Chemical Physics **77** (1982), 1153.
- [SRN78] J. Slater, F.H. Read, S.E. Novick and W.C. Lineberger, *Alkali negative ions. III. Multichannel photodetachment study of  $Cs^-$  and  $K^-$* , Physical Review A **17** (1978), no. 1, 201–213.
- [SST92] F. Shimizu, K. Shimizu and H. Takuma, *Stark Phase Shift and Deflection in the Ultracold Atomic Interferometer*, Japan Journal of Applied Physics **31** (1992), L436–L438.

- [SW79] R.M. Stehman and S.B. Woo, *Zero-core-contribution model and its application to photodetachment of atomic negative ions*, Physical Review A **20** (1979), no. 1, 281–290.
- [SWL96] S. Salomonson, H. Warston and I. Lindgren, *Many-body calculations of the electron affinity for Ca and Sr*, Physical review letters **76** (1996), no. 17, 3092–3095.
- [Va99] C. Valli, *Microscopie de photodétachement de  $O^-$  et  $F^-$  : mesure des affinités électroniques et des déphasages par imagerie de fonction d'onde*, Thèse, Université Paris XI, U.F.R. scientifique d'Orsay, 1999.
- [VBD99] C. Valli, C. Blondel and C. Delsart, *Measuring electron affinities with the photodetachment microscope*, Physical Review A **59** (1999), no. 5, 3809–3815.
- [WAC09] U. Warring, M. Amoretti, C. Canali, A. Fischer, R. Heyne, J.O. Meier, C. Morhard and A. Kellerbauer, *High-resolution laser spectroscopy on the negative osmium ion*, Physical Review Letters **102** (2009), no. 4, 43001 [4 pages].
- [We61] A.W. Weiss, *Configuration Interaction in Simple Atomic Systems*, Physical Review **122** (1961), no. 6, 1826–1836.
- [Wi41] R. Wildt, *The Continuous Spectrum of Stellar Atmospheres Consisting Only of Atoms and Negative Ions of Hydrogen.*, The Astrophysical Journal **93** (1941), 47.
- [Wi48] E.P. Wigner, *On the behavior of cross sections near thresholds*, Physical Review **79** (1948), no. 9, 1002–1009.
- [WRG88] H.-Y. Wong, A.R.P. Rau and C.H. Greene, *Negative-ion photodetachment in an electric field*, Physical Review A **37** (1988), no. 7, 2393–2403.
- [YKB03] J.N. Yukich, T. Kramer, T. and C. Bracher, *Observed photodetachment in parallel electric and magnetic fields*, Physical Review A **68** (2003), no. 3, 33412 [8 pages].
- [ZD10a] L.B. Zhao and J.B. Delos, *Dynamics of electron wave propagation in photoionization microscopy. I. Semiclassical open-orbit theory*, Physical Review A **81** (2010), no. 5, 53417 [10 pages].
- [ZD10b] L.B. Zhao and J.B. Delos, *Dynamics of electron wave propagation in photoionization microscopy. II. Quantum-mechanical formulation*, Physical Review A **81** (2010), no. 5, 53418 [7 pages].

## Troisième partie

# Publications

## Sommaire

---

Liste de publications (première page)

150

---



# Highly scannable injection seeded nanosecond Ti:sapphire ring laser

L. Cabaret and C. Drag<sup>a</sup>

Laboratoire Aimé Cotton, Univ Paris-Sud, CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

Received: 9 March 2010 / Accepted: 25 May 2010

Published online: 19 July 2010 – © EDP Sciences

**Abstract.** A widely tunable injection seeded Ti:sapphire ring cavity has been developed and characterized. The seeding source is a single mode quasi continuous wave Ti:Sa laser, continually tunable over more than  $2.5 \text{ cm}^{-1}$  (75 GHz). Its short term (pulse to pulse) stability is on the order of  $\pm 3.2 \text{ MHz}$  at a repetition rate of 20 Hz. The long term absolute stability is limited up to now to about  $\pm 10 \text{ MHz}$ . These frequency characteristics are transferred to the pulsed emission with minor degradations. The frequency chirps and shifts during the pulses are also studied using an optical heterodyne technique.

## 1 Introduction

High resolution laser spectroscopy, particularly molecular spectroscopy, requires single mode laser sources that cover a wide wavelength range and moreover that are continuously tunable over large frequency domains in a single run. A great part of the visible and near IR spectrum is easily covered by single mode CW lasers, such as dye lasers, titanium:sapphire (Ti:Sa) lasers, laser diodes, and more recently optical parametric oscillators (OPOs). Even the UV side of the spectrum is attained by the use of highly efficient frequency doubling cavities, up to a wavelength of around 200 nm. However, solid state tunable CW lasers do not cover the entire domain (UV to near IR); large “holes” remain, particularly between 500 and 680 nm, and even OPOs are not able up to now to replace completely visible dye lasers. Most favorable configurations associate OPO and frequency doubling, with an external cavity [1] or without [2]. Due to the high peak power of the laser emission, the pulsed mode allows us to have access to virtually any wavelength, from VUV to far IR, by the use of nonlinear effects in various media. In fact, starting from a wide band laser medium such as Ti:Sa, this spectrum can be almost completely covered using more or less complicated mixing schemes. The oscillator linewidth is reduced if one inserts dispersing components inside the cavity. In a single mode CW cavity, the thinner selecting filter is generally a Fabry-Perot etalon. Obtaining a single mode emission from a pulsed cavity is less easy since the existence of a non homogeneous broadening behavior in the high gain transient regime permits the coexistence of many axial modes.

Therefore, rather than stacking filters, it is by far more efficient and cleaner to seed a pulsed cavity with a sin-

gle mode, well frequency controlled, CW beam. Provided that the seeded frequency is matched (in phase) with one resonant mode of the pulsed cavity and that its amplitude greatly exceeds the spontaneous emission noise, all the fluorescence can be quenched inside this mode. In the optimum matching conditions, up to 99.8% of the pulsed emission intensity has been measured at the seeder frequency [3]. In return, for the conceptual simplicity of the configuration, several precautions must be taken concerning the beam alignment, the parameters adjustment (waist position and dimension) and the cavity length control. In the case of Ti:Sa pumped by a nanosecond pulse light, the cavity works in the gain switched regime so that the seeding is operated in its simplest form since there is no need for a Q-switch assembly.

Application domains of single mode nanosecond lasers are various and they are those that need highly coherent beams. One of the most demanding experiment, in terms of spatial and temporal coherence, is population transfer in molecules by the use of a STIRAP scheme [4,5]. The efficiency of the transfer to a selectively chosen level is directly linked to the quality of the beams coherence. In practice, one measures the spatial coherence for instance by propagating the laser beam through the focal zone of a lens and evaluating the quality factor  $M^2$ . This factor gives how many times the beam is from the diffraction limit. Measuring the temporal coherence is a more tedious task: the linewidth must be evaluated in the MHz range which corresponds to a resolution limit for most of the measuring methods. Global linewidth measurement methods sum in time all the physical broadening contributions, they include for instance the use of a high finesse Fabry-Perot interferometer for observing the Airy pattern broadening and make a deconvolution from the apparatus function. This method has been recently used by Dupré and Miller to measure the frequency pulse shape of a high

<sup>a</sup> e-mail: cyril.drag@lac.u-psud.fr

# Frequency stabilization at the kilohertz level of a continuous intracavity frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator

Oussama Mhibik, Thu-Hien My, David Pabœuf, Fabien Bretenaker,\* and Cyril Drag

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS-Université Paris Sud 11, 91405 Orsay Cedex, France

\*Corresponding author: Fabien.Bretenaker@lac.u-psud.fr

Received March 30, 2010; revised June 11, 2010; accepted June 12, 2010;

posted June 25, 2010 (Doc. ID 126204); published July 7, 2010

A continuous intracavity frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator (OPO) is stabilized to the side of the transmission peak of a medium finesse Fabry–Perot cavity. The narrow bandwidth of the frequency noise of this OPO allows this simple scheme to lead to a stability of a few kilohertz with respect to the locking etalon. The system, operating in the visible domain, remains locked for more than 1 h. © 2010 Optical Society of America  
OCIS codes: 190.4970, 190.2620.

Rare-earth ions embedded in crystalline matrices are promising candidates for the realization of optically controlled quantum computers [1–3] and quantum memories [4,5]. They are even considered to achieve the strong coupling regime of cavity quantum electrodynamics in monolithic optical resonators [6]. All these applications use the remarkably long coherence lifetimes of these ions. For example, homogeneous linewidths smaller than 1 kHz have been observed for the optical transitions of europium and praseodymium [7,8]. Unfortunately, the optical transitions of these two latter ions lie at 579 and 606 nm, respectively, in the domain where diode lasers are not readily available. Moreover, some coherent processes used to drive these systems [9] require a laser whose short-term linewidth is smaller than the homogeneous linewidth of the considered ion, i.e., in the kilohertz domain. Up to now, this has been possible only using dye lasers [10]. However, due to the high-frequency noise of the dye jet, these systems can be stabilized to the kilohertz level only with an intracavity phase modulator [11]. Recent works on quantum memories and quantum information processing have stressed the importance of laser frequency stability [3,5,12]. We have recently shown that an intracavity frequency doubled singly resonant optical parametric oscillator (SHG-SROPO, where SHG stands for second-harmonic generation) is a good candidate to replace cw dye lasers [13]. In particular, the bandwidth of the frequency fluctuations of such a source is much narrower than that for a dye laser [13]. This is consistent with several reports showing that SROPOs can be relatively easily stabilized at the megahertz level [14,15] and below [16,17]. Our aim here is to take advantage of the small bandwidth of the frequency fluctuations of this system to prove that a simple stabilization of the frequency on the side of the transmission fringe of a Fabry–Perot (FP) cavity permits to reach the kilohertz frequency stability range. Although subkilohertz frequency stabilization of doubly resonant OPOs has already been achieved [18], this has, to our best knowledge, never been achieved in the case of SROPOs.

Our experimental setup is schematized in Fig. 1. The OPO is pumped at 532 nm by a 10 W single-frequency Verdi laser. It is based on a 30-mm-long MgO-doped periodically poled stoichiometric lithium tantalate (PPSLT)

crystal ( $d_{\text{eff}} \simeq 11$  pm/V) manufactured and coated by HC Photonics. This single-grating crystal (7.97  $\mu\text{m}$  period) is antireflection coated for the pump, signal, and idler. It leads to quasi-phase-matching for an idler wavelength in the 1200–1400 nm range. The OPO ring cavity is 1.15 m long and consists of four mirrors. The two mirrors sandwiching the PPSLT crystal have a 150 mm radius of curvature. The two other mirrors are plane. This cavity is resonant for the idler only. The estimated waist of the idler beam at the middle of the PPSLT crystal is 37  $\mu\text{m}$ . The pump beam is focused to a 53  $\mu\text{m}$  waist inside this crystal. All mirrors are designed to exhibit a reflectivity larger than 99.8% between 1.2 and 1.4  $\mu\text{m}$  and a transmission larger than 95% at 532 nm and between 850 and 950 nm.

A 25-mm-long beta-barium borate (BBO) crystal is inserted between the two plane mirrors, i.e., at the second waist of the cavity. It is antireflection coated for the idler and the second-harmonic wavelengths. A 1.5-mm-thick etalon with a finesse  $F = 3$  is also inserted in this leg of the cavity. In these conditions and with the PPSLT crystal heated at  $T = 103$  °C, the system oscillates at an idler wavelength of 1204 nm with a pump threshold equal to 800 mW. At a pump power equal to 3.4 W, the SHG-SROPO emits a single-frequency orange beam at 602 nm with a 90 mW output power (only a few milliwatts

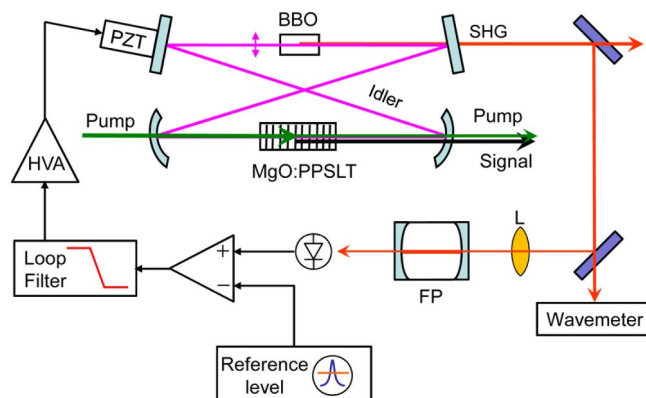


Fig. 1. (Color online) Experimental setup. HVA, high-voltage amplifier; PZT, piezoelectric transducer; L, focusing lens; FP, Fabry–Perot cavity.



# Effect of a magnetic field in photodetachment microscopy

W. Chaibi, R.J. Peláez, C. Blondel<sup>a</sup>, C. Drag, and C. Delsart

Laboratoire Aimé-Cotton (CNRS), Université Paris-Sud, Bât. 505, 91405 Orsay Cedex, France

Received 23 December 2009 / Received in final form 19 February 2010

Published online 13 April 2010 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2010

**Abstract.** The effect of an external static magnetic field of arbitrary orientation with respect to the electric field, on the electron interference ring patterns observed by the photodetachment microscope is studied both experimentally and theoretically. The design of the interaction chamber has been modified to superimpose a controlled uniform magnetic field on the whole volume accessible to the interfering electron. Contrary to a previous study in weaker fields, where the overall dimension of the interferogram was not modified, the effect of the magnetic field here encompasses a regime of magnetic refocusing. A quantitative analysis is carried out using a closed-orbit perturbative calculation of the interference phase at the centre of the ring pattern. The essential result of this work is still the invariance of the extreme interference phase whatever the direction and magnitude of the applied magnetic field, up to values 100 times larger than in the previous experimental study. This property can be applied to revise former electron affinity measurements. Partly due to the previously unsuspected robustness of the electron interferograms vs. magnetic fields, partly thanks to the 2006 CODATA revision of the energy conversion factors, one can update the values of the electron affinities of  $^{16}\text{O}$ ,  $^{28}\text{Si}$  and  $^{32}\text{S}$  to 1.4611134(9), 1.3895210(7) and 2.0771040(6) eV respectively.

## 1 Introduction

Photodetachment microscopy [1,2] has been used since 1996 for showing that electron interferences can be produced in a uniform electric field [3] and for the best-ever electron affinity measurements on atoms [4] and molecules [5]. This technique uses the near-threshold photodetachment of negative ions by a monochromatic laser field, which provides an almost point-like source of low-energy electrons with fixed kinetic energy and the emission of a spherical electron wave. An external uniform electric field  $\mathbf{E}$  plays the role of a ‘wave-folder’ for this electron wave. In such a field, the electron undergoes constant acceleration, as in free fall, so every point within reach on the detector is hit by two parabolic trajectories, along which the electron travels simultaneously to finally interfere with itself. The variations of the phase difference between the two trajectories give rise to an interference pattern, or interferogram, which, due to the cylindrical symmetry of the problem, takes the form of concentric rings. The radius of this ring pattern is just the classical maximum off-axis distance that can be reached by the projectile, i.e. at first order the product of the initial ejection velocity  $V_0$  by the time-of-flight  $T$  to the detector [1,2]. The electron interferogram, hence the fringe interval, are made large enough to be observable by setting the detector at a macroscopic distance  $z_0$ , typically 0.5 m, from the detachment region. From the beginning of the experiments with the photodetachment microscope, a particular effort

was made to avoid possible effects of the Earth magnetic field by shielding the whole uniform-field region with an efficient double layer of  $\mu$ -metal [2].

However the question remained of the effect an external static magnetic field  $\mathbf{B}$  could have on the electron interferograms observed by the photodetachment microscope. Two distinct aspects can be considered. On the one hand the classical trajectories are modified by the Lorentz force due to the magnetic field, which leads to a shift of the interferograms on the detector. On the other hand, there is an additional phase difference produced between every pair of unperturbed trajectories, proportional to the flux of the magnetic field between them.

Recently, but for magnetic fields  $\mathbf{B}$  still small enough to produce the same linear shift on all trajectories, we provided experimental and theoretical evidence that the interferograms only undergo a global shift, in other words that the fringe shift is just the same as the trajectory shift [6]. However, though both effects were maximised by choosing a magnetic field perpendicular to the trajectories, the case tells nothing of what happens at higher  $B$  values, namely when the cyclotron frequency  $\Omega = eB/m$  (with  $m$  the electron mass and  $e$  the absolute value of the electron charge) is no longer negligible compared to  $T^{-1}$ .

The aim of the present study is to enter such a higher-field regime, in which the deflection by the Lorentz force ceases to be proportional to  $B$ , and can no longer be assumed identical for all trajectories. Theoretical calculations in this case have been made only for exactly parallel uniform electric and magnetic fields, either when

<sup>a</sup> e-mail: christophe.blondel@u-psud.fr

**Isotope shift in the sulfur electron affinity: Observation and theory**Thomas Carette,<sup>1</sup> Cyril Drag,<sup>2</sup> Oliver Scharf,<sup>1</sup> Christophe Blondel,<sup>2</sup> Christian Delsart,<sup>2</sup> Charlotte Froese Fischer,<sup>3</sup> and Michel Godefroid<sup>1,\*</sup><sup>1</sup>*Chimie Quantique et Photophysique, Université Libre de Bruxelles - CP160/09, B-1050 Brussels, Belgium*<sup>2</sup>*Laboratoire Aimé-Cotton, CNRS, Université Paris-sud, F-91405 Orsay cedex, France*<sup>3</sup>*National Institute of Standards and Technology Gaithersburg, Maryland 20899-8420, USA*

(Received 5 February 2010; published 28 April 2010)

The sulfur electron affinities  ${}^eA(S)$  are measured by photodetachment microscopy for the two isotopes  ${}^{32}\text{S}$  and  ${}^{34}\text{S}$  (16 752.975 3(41) and 16 752.977 6(85)  $\text{cm}^{-1}$ , respectively). The isotope shift in the electron affinity is found to be more probably positive,  ${}^eA({}^{34}\text{S}) - {}^eA({}^{32}\text{S}) = +0.0023(70) \text{ cm}^{-1}$ , but the uncertainty allows for the possibility that it may be either “normal” [ ${}^eA({}^{34}\text{S}) > {}^eA({}^{32}\text{S})$ ] or “anomalous” [ ${}^eA({}^{34}\text{S}) < {}^eA({}^{32}\text{S})$ ]. The isotope shift is estimated theoretically using elaborate correlation models, monitoring the electron affinity and the mass polarization term expectation value. The theoretical analysis predicts a very large specific mass shift (SMS) that counterbalances the normal mass shift (NMS) and produces an anomalous isotope shift  ${}^eA({}^{34}\text{S}) - {}^eA({}^{32}\text{S}) = -0.0053(24) \text{ cm}^{-1}$ , field shift corrections included. The total isotope shift can always be written as the sum of the NMS (here  $+0.0169 \text{ cm}^{-1}$ ) and a residual isotope shift (RIS). Since the NMS has nearly no uncertainty, the comparison between experimental and theoretical RIS is more fair. With respective values of  $-0.0146(70) \text{ cm}^{-1}$  and  $-0.0222(24) \text{ cm}^{-1}$ , these residual isotope shifts are found to agree within the estimated uncertainties.

DOI: [10.1103/PhysRevA.81.042522](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.042522)

PACS number(s): 31.30.Gs, 31.15.ve, 32.80.Gc, 32.10.Hq

**I. INTRODUCTION**

Photodetachment microscopy, which is the analysis of the electron interference pattern naturally produced when photodetachment occurs in the presence of an electric field [1,2], was applied to a beam of  ${}^{32}\text{S}^-$  ions and allowed to measure the detachment thresholds corresponding to different fine-structure levels of the negative ion  $\text{S}^-$  and the neutral atom S [3]. The electron affinity of sulfur, at 2.077 eV, is well suited for detachment by a tunable dye laser, which provides a third way of measuring neutral S fine structure, besides VUV spectroscopy of S I lines and direct fine-structure resonance spectroscopy. Dye laser photodetachment of  $\text{S}^-$  was also used as a probe of microwave-induced transitions of hyperfine-split Zeeman transitions, which lead to a measurement of the hyperfine structure of  ${}^{33}\text{S}^-$  [4]. The fine structures of  $\text{S}^-$  and neutral S, with the definition of the six “fine-structure detachment thresholds,” labeled A, B, C, D, E, and F (in the order of increasing excitation energy) are displayed in Fig. 1. In the present work, photodetachment microscopy is used to measure the electron affinity  ${}^eA$  (threshold C) of the even isotopes 32 and 34 of sulfur. The sensitivity of the method made it possible to record a significant number of  ${}^{34}\text{S}$  detachment events, even though sulfur was produced from a chemical compound with no isotopic enrichment and detachment occurred at very low energies above threshold (namely in the sub-meV range). The accuracy of photodetachment-microscopy-based electron affinity measurements makes it possible to get an estimate of the isotope shift, precise enough to make comparison with theory significant.

On the theoretical side, the *ab initio* calculation of electron affinities is a challenge. Various methods for evaluating electron binding energies and affinities are discussed by Lindgren [5], presenting five different techniques, from the

Koopmans-theorem method, up to the density-functional theory. Lindgren’s survey focuses on the many-body perturbation approach and only mentions, without further discussion, a sixth method that can always be used: separate many-body calculations for the initial and final states, using some elaborate variational technique, like multiconfiguration or configuration-interaction methods. This approach can indeed be successful for small systems (see for instance Ref. [6] for  ${}^7\text{Li}$ ) and is precisely the one attempted in the present work, although the correlation balance is more difficult to achieve for a large number of electrons.

The electron affinity of sulfur has been estimated, after the pioneering work of Clementi *et al.* [7], by Woon and Dunning [8] who treated the second row atoms through multireference single and double excitation configuration-interaction calculations and by Gutsev *et al.* [9] using the coupled-cluster method. In a benchmark study of *ab initio* and density-functional calculations of electron affinities covering the first- and second-row atoms, de Oliveira *et al.* [10] concluded that the best *ab initio* results agree, on average, to better than 0.001 eV with the most recent experimental results. For heavy systems, the relativistic effects become crucial [11,12] and an accuracy better than 0.04 eV (10%) was difficult to achieve for the electron affinity of lead in the full relativistic approach [13].

The search for a possible variation of the fine-structure constant  $\alpha$  has renewed interest in developing reliable *ab initio* computational methods for atomic spectra [14,15]. Theory versus experiment comparisons of atomic isotope shifts can serve as sensitive tests of our computational ability for some important electronic factors. Stimulated by photodetachment experiments [16,17], theoretical calculations on isotope shifts in electron affinities have been attempted for oxygen [18,19], using the numerical multi-configuration Hartree-Fock (MCHF) approach. Beryllium was another interesting target [20], but *ab initio* calculations remain scarce, requiring the calculation of two properties—the electron affinity and its isotope

\*mrgodef@ulb.ac.be

# Pulsed photodetachment microscopy and the electron affinity of iodine

R J Peláez, C Blondel, C Delsart and C Drag

Laboratoire Aimé-Cotton, Centre national de la recherche scientifique, bâtiment 505, Univ Paris-sud, F-91405 Orsay cedex, France<sup>1</sup>

E-mail: [christophe.blondel@lac.u-psud.fr](mailto:christophe.blondel@lac.u-psud.fr)

Received 9 February 2009, in final form 19 April 2009

Published 26 May 2009

Online at [stacks.iop.org/JPhysB/42/125001](http://stacks.iop.org/JPhysB/42/125001)

## Abstract

Photodetachment microscopy is carried out on a beam of  $^{127}\text{I}^-$  ions with a nanosecond pulsed laser. The photoelectron interferograms are recorded by means of a digital camera that images the light spots produced by the amplified photoelectrons on a phosphor screen. This is the first implementation of such an optical imaging technique in photodetachment microscopy. Due to their sensitivity to the photoelectron energy, the recorded electron interferograms can be quantitatively analysed to produce a measure of the electron affinity of iodine  $^eA(^{127}\text{I})$  with an accuracy improved by more than a factor of 2 with respect to the best previous measurement. The result is  $2467\,287.4(29)\text{ m}^{-1}$  or  $3.059\,0463(38)\text{ eV}$ .

## 1. Introduction

Photodetachment microscopy, since it was implemented for the first time (Blondel *et al* 1996), has always relied on the CW excitation of a beam of negative ions, with a relatively low instantaneous photodetachment rate of, typically, a few  $10^3$  or  $10^4$  events per second. This relatively low rate has allowed one to measure the detection position of every photoelectron in real time. The electron interferogram produced when photodetachment takes place in an external electric field (Blondel *et al* 1996, 1999) was thus reconstructed by the statistics of detection positions recorded in the most direct way.

The detector used up to now has been Model 3391 of Quantar Technology Inc<sup>2</sup>. It was based on a stack of five microchannel plates (MCPs) followed by a resistive-anode position encoder. This system has a very good spatial resolution ( $60\text{ }\mu\text{m}$  FWHM) and linearity, but the direct analysis it makes of every electron position hinders dealing with electrons at time intervals shorter than  $10\text{ }\mu\text{s}$ . It is thus not adapted to photodetachment experiments carried out in the pulsed regime, for even 'long' laser pulses actually pack the production of photoelectrons during time lapses of only a few nanoseconds. Except in the case of an attenuation so strong as to reduce the photoelectron production to one electron per pulse (which would limit the average photodetachment

current to uselessly small values), pulsed photodetachment will produce bunches of electrons too closely packed together in time to match with the Quantar detector principles of operation.

Yet the pulsed regime has advantages worth being explored. A fundamental one is that pulsed excitation opens the way to multiphoton detachment (cf section 2.2), which has never been investigated by photodetachment microscopy. Another advantage is that a high peak power opens the way to a variety of external nonlinear processes, allowing the adaptation of the laser wavelength to many detachment cases. Frequency differences may serve to produce the radiation suitable for threshold detachment of a lot of weakly bound negative ions. Frequency sums or harmonic generation would make it easy to produce photons energetic enough to detach the most tightly bound negative ions or reach the upper detachment thresholds that correspond to the excited levels of the parent neutral atom.

A difficulty with pulsed laser sources is that they do not usually possess as good spectral qualities as CW tunable lasers. A lot of efforts have thus been made since the 1970s, especially at Laboratoire Aimé-Cotton (Pinard and Liberman 1977), to constrain pulsed tunable lasers to a single-mode regime. Spectral broadening due to the finite time duration of the laser pulse of course remains, but with pulses of a few  $10^{-8}\text{ s}$ , this limitation stays below the best spectral accuracy achieved in photodetachment microscopy experiments (Blondel *et al* 2006).

<sup>1</sup> <http://www.lac.u-psud.fr>.

<sup>2</sup> 2620A Mission Street, Santa Cruz, CA 95060-5703, USA.

# Stimulated Raman scattering in an optical parametric oscillator based on periodically poled MgO-doped stoichiometric LiTaO<sub>3</sub>

T-H. My, O. Robin, O. Mhibik, C. Drag, and F. Bretenaker

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS-Université Paris Sud 11,

Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

[Fabien.Bretenaker@lac.u-psud.fr](mailto:Fabien.Bretenaker@lac.u-psud.fr)

**Abstract:** The evolution of the spectrum of a singly resonant optical parametric oscillator based on an MgO-doped periodically poled stoichiometric lithium tantalate crystal is observed when the pump power is varied. The onset of cascade Raman lasing due to stimulated Raman scattering in the nonlinear crystal is analyzed. Spurious frequency doubling and sum-frequency generation phenomena are observed and understood. A strong reduction of the intracavity Raman scattering is obtained by a careful adjustment of the cavity losses.

© 2009 Optical Society of America

**OCIS codes:** (190.4970) Parametric oscillators and amplifiers; (190.5650) Raman effect.

---

## References and links

1. U. Strössner, A. Peters, J. Mlynek, and S. Schiller, J.-P. Meyn, and R. Wallenstein, "Single-frequency continuous-wave radiation from 0.77 to 1.73  $\mu\text{m}$  generated by a green-pumped optical parametric oscillator with periodically poled LiTaO<sub>3</sub>," *Opt. Lett.* **24**, 1602-1604 (1999).
2. J.-M. Melkonian, T.-H. My, F. Bretenaker, and C. Drag, "High spectral purity and tunable operation of a continuous singly resonant optical parametric oscillator emitting in the red," *Opt. Lett.* **32**, 518-520 (2007).
3. G.K. Samanta, G. R. Fayaz, and M. Ebrahim-Zadeh, "1.59 W, single-frequency, continuous-wave optical parametric oscillator based on MgO:sPPLT," *Opt. Lett.* **32**, 2623-2625 (2007).
4. G.K. Samanta, and M. Ebrahim-Zadeh, "Continuous-wave singly-resonant optical parametric oscillator with resonant wave coupling," *Opt. Express* **16**, 6883-6888 (2008).
5. S. E. Harris, "Tunable optical parametric oscillators," *Proc. IEEE* **57**, 2096-2113 (1969).
6. A. V. Okishev and J. D. Zuegel, "Intracavity-pumped Raman laser action in a mid-IR, continuous-wave (cw) MgO:PPLN optical parametric oscillator," *Opt. Express* **14**, 12169-12173 (2006).
7. A. Henderson and R. Stafford, "Spectral broadening and stimulated Raman conversion in a continuous-wave optical parametric oscillator," *Opt. Lett.* **32**, 1281-1283 (2007).
8. M. Vainio, J. Peltola, S. Persijn, F. J. M. Harren, and L. Halonen, "Thermal effects in singly resonant continuous-wave optical parametric oscillators," *Appl. Phys. B* **94**, 411-427 (2009).
9. G. K. Samanta and M. Ebrahim-Zadeh, "Continuous-wave, single-frequency, solid-state blue source for the 425-489 nm spectral range," *Opt. Lett.* **33**, 1228-1230 (2008).
10. T.-H. My, C. Drag, and F. Bretenaker, "Single-frequency and tunable operation of a continuous intracavity-frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator," *Opt. Lett.* **33**, 1455-1457 (2008).
11. W. D. Johnston, Jr. and I. P. Kaminow, "Temperature dependence of Raman and Rayleigh scattering in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>," *Phys. Rev.* **168**, 1045-1054 (1968).
12. A. F. Penna, A. Chaves, P. da R. Andrade, and S. P. S. Porto, "Light scattering by lithium tantalate at room temperature," *Phys. Rev. B* **13**, 4907-4917 (1976).
13. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd edition (Academic Press, 2008).
14. A. Henderson and R. Stafford, "Intra-cavity power effects in singly resonant cw OPOs," *Appl. Phys. B* **85**, 181-184 (2006).

# Single-frequency and tunable operation of a continuous intracavity-frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator

Thu-Hien My, Cyril Drag, and Fabien Bretenaker\*

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS-Université Paris Sud 11, 91405 Orsay Cedex, France

\*Corresponding author: Fabien.Bretenaker@lac.u-psud.fr

Received February 6, 2008; revised May 19, 2008; accepted May 20, 2008;  
posted May 27, 2008 (Doc. ID 92498); published June 24, 2008

A widely tunable continuous intracavity-frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator based on MgO-doped periodically poled stoichiometric lithium tantalate crystal is described. The idler radiation resonating in the cavity is frequency doubled by an intracavity BBO crystal. Pumped in the green, this system can provide up to 485 mW of single-frequency orange radiation. The system is continuously temperature tunable between 1170 and 1355 nm for the idler, 876 and 975 nm for the signal, and between 585 and 678 nm for the doubled idler. The free-running power and frequency stability of the system have been observed to be better than those for a single-mode dye laser. © 2008 Optical Society of America

OCIS codes: 190.4970, 190.2620.

Tunable and ultranarrow linewidth visible sources are mandatory instruments for high-resolution spectroscopy [1] or quantum information processing applications of rare-earth ions embedded in solid-state matrices [2] or color centers in diamond [3]. To our knowledge, until now, dye lasers, which are rather cumbersome and difficult to stabilize, have been the only available sources to fill this need. Besides, no broadly tunable frequency-doubled diode-pumped solid-state lasers (for an example, see [4]) are readily available in the red-orange part of the spectrum. Consequently, the development of an all-solid-state tunable cw source in the visible with a low-frequency noise is a major challenge in this field. For example, we focus here on the wavelength of 606 nm, which corresponds to the transition used to coherently control  $\text{Pr}^{3+}$  ions.

Optical parametric oscillators (OPOs) are an especially promising approach toward this goal. Indeed, in recent years, the increased availability of novel nonlinear materials and high-power solid-state single-frequency pump sources has led to great advances in the development of cw singly resonant OPOs (SROPOs). In a previous work, we successfully used the recently developed periodically poled near stoichiometric  $\text{LiTaO}_3$  (PPSLT) to build a cw SROPO emitting 100 mW in the red and pumped by a commercial green laser [5]. However, the output power of this system was limited by its high threshold and by the onset of thermal effects in the nonlinear crystal owing to the large intracavity power at a visible wavelength. Another way to reach visible wavelengths, which has been successfully applied to perform spectroscopy of ions in a solid with an OPO, consists of building an OPO emitting in the near IR and frequency doubling the idler in a second resonant cavity [6,7]. However, this complicates the system and reduces its overall efficiency. Another possible track consists of doubling or upconverting the IR light resonating inside the OPO cavity. This is potentially more efficient because of the high intensity of

the resonating beam [8–13]. This has been experimentally realized in different pulsed regimes [8,14,15]. In the cw regime, Bosenberg *et al.* [16] reported a 629 nm solid-state source pumped by cw Nd:YAG and based on PPLN crystal. In this device, the same crystal is designed to provide the OPO gain and to sum the signal and the remaining pump. This source is quite efficient, but its thermal tunability range is not very broad because the two sections of the nonlinear crystal are at the same temperature. Moreover, in this architecture, one can expect the jitter of the pump source to be completely transferred to the visible radiation. In [5], the choice of a SROPO pumped at 532 nm and resonating on the red signal wave failed to generate more than 100 mW of red output because of thermal effects owing to the nonnegligible residual absorption of the PPSLT in the visible. In the present work, we adopt a smarter strategy that avoids thermal lensing effects by resonating the IR idler wave and performing its intracavity second-harmonic generation (SHG) to achieve efficient red-orange synthesis. This architecture takes advantage of the high near-IR power that can be obtained from SROPOs based on PPSLT [17,18].

Our experimental setup is schematized in Fig. 1. The OPO is pumped at 532 nm by a cw Verdi laser. The nonlinear crystal is a 30-mm-long 5%

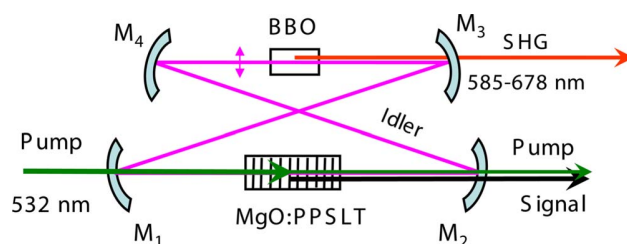


Fig. 1. (Color online) Schematic of the green-pumped intracavity-doubled SROPO (SHG-SROPO). Only the idler (wavelength between 1175 and 1355 nm) resonates in the ring cavity. MgO:PPSLT, parametric gain crystal; BBO, frequency-doubling crystal;  $M_1$ – $M_4$ , mirrors.

# Do fringes and trajectories shift equally in matter-wave interferometers? The example of photodetachment microscopy in a magnetic field

W. CHAIBI, C. BLONDEL<sup>(a)</sup>, C. DELSART and C. DRAG

Laboratoire Aimé-Cotton (Centre National de la Recherche Scientifique), Université Paris-Sud  
bâtiment 505, F-91405 Orsay cedex, France, EU

received 3 December 2007; accepted in final form 25 February 2008  
published online 28 March 2008

PACS 03.75.-b – Matter waves  
PACS 07.60.Ly – Interferometers  
PACS 32.80.Gc – Photodetachment of atomic negative ions

**Abstract** – Matter-wave interferometers, either with electrons, atoms or molecules, owe their sensitivity to the accuracy of phase-shift measurements. One may, however, raise the question whether the shift undergone by interference fringes, when external forces are applied, actually differs from the shift of classical trajectories. For the case of a magnetic perturbation, we provide experimental evidence and a vector demonstration that interference patterns only undergo a global shift. The experiment is performed with the photodetachment microscope, with a uniform magnetic field superimposed over the whole volume accessible to the interfering electron. Identity of the fringe and trajectory shifts is established for any two-wave interferometer using charged particles, submitted to a magnetic field.

Copyright © EPLA, 2008

Richard Feynman, in his famous lecture on “*Quantum behavior*” [1], claims that the observation [2] of interference fringes with matter waves, *i.e.* with massive particles, for instance in a Young’s slits experiment such as the one depicted in fig. 1, “contains the *only* mystery” of quantum mechanics. The mystery is made even greater when one realises that these interference fringes can reveal the presence of *e.g.* a magnetic field in regions of space where the test particle cannot penetrate [3]. The latter phenomenon has been known as the “Aharonov-Bohm (AB) effect” [4,5], and was actually observed in several experiments [6,7].

During the last twenty years, many experiments have endeavoured to bring to observation the “matter-wave” character of bigger and bigger objects. The “*only* mystery” remains, but neutron [8] and even atom interferometry [9,10] have become commonplace experiments. A recent experiment demonstrated the wave behaviour of molecules as heavy as fluorofullerenes, with a mass of 1632 atomic mass units [11]. One aim of this quest is to reach masses large enough to bring the interplay of matter and gravitational waves to observation [12].

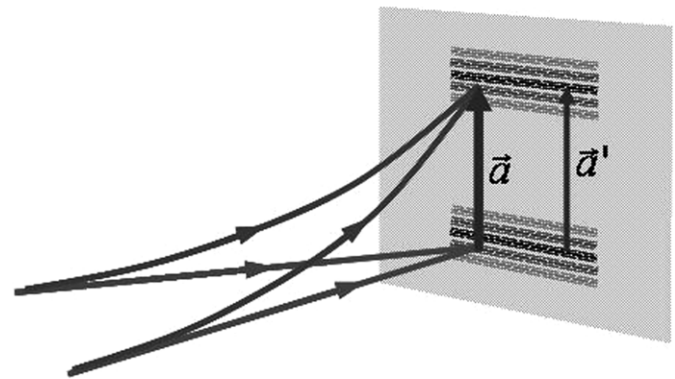


Fig. 1: The two shifts to be observed with an interferometer. A shift  $\vec{a}$  of the trajectories and a shift  $\vec{a}'$  of the interference fringes will appear in a matter-wave interferometer submitted to an external perturbation  $\vec{f}$ . The perturbation can be either a uniform potential gradient, *i.e.* a velocity-independent force, or a magnetic field (if one works with charged particles). Rotation of the experimental set-up with constant velocity produces a perturbation that is at first order formally analogous to the latter.

Leaving aside the discussion on the AB paradox, we shall get interested in the present work by the simple case of uniform fields, especially a uniform magnetic field, and

<sup>(a)</sup>E-mail: christophe.blondel@lac.u-psud.fr

# Active mode locking of continuous-wave doubly and singly resonant optical parametric oscillators

Jean-Michel Melkonian,<sup>1</sup> Nicolas Forget,<sup>3</sup> Fabien Bretenaker,<sup>2</sup> Cyril Drag,<sup>2</sup> Michel Lefebvre,<sup>1,\*</sup> and Emmanuel Rosencher<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Office National d'Études et de Recherches Aéronautiques, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex, France

<sup>2</sup>Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

<sup>3</sup>Fastlite, École Polytechnique, Bâtiment 403, F-91128 Palaiseau Cedex, France

\*Corresponding author: michel.lefebvre@onera.fr

Received January 16, 2007; revised April 11, 2007; accepted April 13, 2007;  
posted April 23, 2007 (Doc. ID 79028); published June 6, 2007

We report on what we believe to be the first active mode locking of near-degenerate, doubly and singly resonant cw-pumped optical parametric oscillators (OPOs). We show experimentally that a steady-state regime of short pulses is reached in a few tens of microseconds under cw pumping. The oscillation buildup dynamics of both OPOs is also explored, evidencing an unusual transient behavior in the mode-locking process.

© 2007 Optical Society of America  
OCIS codes: 190.4970, 190.7110.

Since the development of the mode-locked Ti:sapphire laser, there have been many improvements in ultrafast optical sources. Much effort has been made to increase their tunability and wavelength coverage by means of frequency mixing in nonlinear crystals [1] or by synchronous pumping of optical parametric oscillators (SP-OPOs) [2]. Indeed, thanks to the very large bandwidth of parametric amplification [3], SP-OPOs are of particular interest for achieving ultrashort pulse generation with a wide tunability. However, these systems require the use of two optical cavities with carefully matched repetition rates, and in some cases, an intermediate stage is needed to convert the wavelength of the mode-locked laser before pumping the OPO [4]. Consequently, it would be interesting to investigate the feasibility of a directly mode-locked parametric source pumped by a continuous wave (cw) laser, thus eliminating the need for an ultrafast pump laser. However, in an early work, Becker *et al.* [5] stated that mode locking an OPO was unlikely because there is no gain storage in the nonlinear material. On the other hand, one can show that when the pump depletion is negligible, there is a strong theoretical analogy between laser and OPO mode locking. Indeed, by using Haus formalism originally developed for mode-locked lasers [6], and later applied to SP-OPOs [7], and thanks to the very large gain bandwidth of near-degenerate OPOs [8], it is possible to predict that an actively mode-locked OPO may sustain oscillation of 100 ps long pulses in the steady-state regime [9]. Such a prediction was partially checked in a previous work where we demonstrated active mode locking of a quasi cw doubly resonant OPO [10]. Steady state, however, could not be achieved in this work because of the limited duration of the pump pulses. In this Letter, we demonstrate that mode locking of a cw OPO can indeed be obtained in doubly and singly resonant configurations. In both cases, we investi-

gate the transient and steady-state regimes and explore the mechanisms limiting the pulse duration.

The first experimental setup we used is schematized in Fig. 1(a). The doubly resonant OPO (DRO) cavity is a 1.3 m long linear cavity (free spectral range 114.5 MHz). Mirrors  $M_1$  and  $M_2$  have a 100 mm radius of curvature, and mirrors  $M_3$  and  $M_4$  are planar. The angle of incidence on the concave mirrors is limited to  $4^\circ$  to reduce astigmatism. All mirrors are designed for maximum reflectivity ( $R > 98\%$ ) between 1044 and 1084 nm and high transmission ( $T > 95\%$ ) at 532 nm. The nonlinear crystal is a 0.5 mm thick, 30 mm long, 5% MgO-doped periodically poled lithium niobate (PPLN) crystal ( $d_{\text{eff}} = 14$  pm/V) with a single poling period of  $6.92 \mu\text{m}$  for quasi-phase matching, manufactured and antireflection coated ( $R < 1\%$  between 950 and 1150 nm) by HC Photonics. The OPO is pumped at 532 nm by a 10 W cw VERDI laser. A chopper providing 800  $\mu\text{s}$  pump pulses can be used to study the oscillation buildup. The signal and pump waists inside the crystal are 29 and 47  $\mu\text{m}$ , respectively. No photorefractive damage was observed in the crystal up to 2.8 W. Direct active

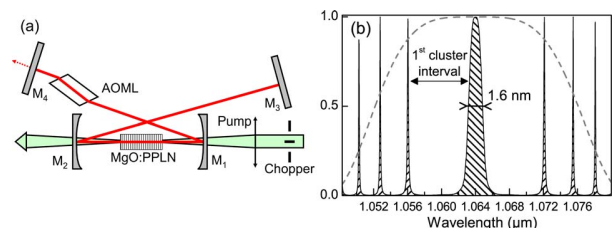


Fig. 1. (Color online) (a) Schematic of the DRO cavity. (b) Clusters of the DRO phase matched for degeneracy (stroked area) and gain curve (dashed curve) as given by  $(\sin \Phi/\Phi)^2$ , where  $\Phi$  is the phase mismatch among the signal, idler, and pump waves in the nonlinear crystal. The clusters are obtained by computing the overlap between the signal and idler frequency combs, for a cavity with 1% loss per optical element, and using [12] for dispersion data.



# Two-colour laser excitation as a way to set an absolute energy scale in photodetachment-microscopy based electron spectrometry

Cyril Drag, Walid Chaibi, Christian Delsart, Christophe Blondel \*

*Laboratoire Aimé-Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique, Univ. Paris-sud, Bâtiment 505 F-91405 Orsay Cedex, France*

Received 16 November 2006; received in revised form 8 February 2007; accepted 2 March 2007

## Abstract

A two-colour laser technique is developed for photodetachment microscopy, by means of microwave modulation of a CW single-mode dye laser. A phase modulation regime is achieved through an electro-optical LiNbO<sub>3</sub> crystal excited at the frequency 1.95 GHz. The two first sidebands created are selected by rejection of the other orders through a plane Fabry–Perot interferometer. With the resulting two-colour radiation, the photodetachment microscopy technique is applied to a beam of <sup>32</sup>S<sup>−</sup> ions. It is shown that the superposition of the two resulting interference patterns can be used as a ‘spectral vernier’ to remove the uncertainty on the electric field and absolute energy scale. Without any initial assumption on the value  $F$  of the electric field in the laser-ion interaction region, a measure of  $F$  and of the electron affinity  $^{\circ}A$  of Sulfur can be obtained. Putting 16 recordings of two-colour photodetachment interferograms together, with the only condition that  $F$  be the same for all experiments, one gets  $^{\circ}A(^{32}\text{S}) = 16752.978(11) \text{ cm}^{-1}$ , which is quite compatible, even though not as accurate, with the most recently recommended value  $^{\circ}A(^{32}\text{S}) = 16752.9760(42) \text{ cm}^{-1}$ . A proposal is made for going from an incoherent to a coherent two-colour photodetachment scheme, which would make photodetachment interferograms sensitive to a new degree of freedom.

© 2007 Elsevier B.V. All rights reserved.

PACS: 03.75.-b; 06.30.Ft; 07.78.+s; 32.10.Hq; 32.80.Gc; 42.60.Fc

Keywords: Photodetachment; Electron interference; Electron affinity; Laser beam modulation

## 1. Introduction

Photodetachment microscopy [1] consists in recording the electron interferogram that appears when a negative ion emits an electron via photodetachment in the presence of a uniform electric field. The interferogram observed by the use of an electron detector with a high spatial resolution can be considered as a direct view on the internal atomic wave function with its node and antinode structure, in a continuum state of the negative ion system. The quantitative analysis, essentially by counting the fringes and numerical fitting, gives an interferometric and very sensitive way of measuring the energy in excess carried by the

photon in the photodetachment process, i.e. the initial kinetic energy of the ejected electron.

This property has been used for several electron affinity measurements [2–6], the accuracy of which is as good, if not better, as the accuracy of the usual laser-photodetachment-at-threshold technique where the total probability of removing the extra electron is recorded as a function of the excitation energy [7–10]. For all the anions that we studied (Br<sup>−</sup>, O<sup>−</sup>, F<sup>−</sup>, Si<sup>−</sup>, S<sup>−</sup>, OH<sup>−</sup>, SH<sup>−</sup>), due to the parity selection rule and the centrifugal effect, the photodetachment final state is a nearly pure  $s$ -wave and the folding of this wave back onto itself in the direction of the electric field produces a cylindrically symmetric interferogram. The same symmetry occurs in the analogous patterns given by photoionisation microscopy [11], the difference being, in this case, that the number of interfering waves can be much

\* Corresponding author. Tel.: +33 169352056; fax: +33 169410156.  
E-mail address: [christophe.blondel@lac.u-psud.fr](mailto:christophe.blondel@lac.u-psud.fr) (C. Blondel).



# High spectral purity and tunable operation of a continuous singly resonant optical parametric oscillator emitting in the red

Jean-Michel Melkonian

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France, and Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex, France

Thu-Hien My, Fabien Bretenaker, and Cyril Drag

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

Received July 10, 2006; revised September 15, 2006; accepted October 30, 2006; posted November 30, 2006 (Doc. ID 72764); published February 2, 2007

Continuous-wave oscillation of a singly resonant optical parametric oscillator operating from 619 to 640 nm has been obtained. Parametric gain is created in a MgO-doped periodically poled stoichiometric lithium tantalate crystal pumped at 532 nm. 100 mW of single-frequency red light have been generated. The signal frequency is tunable, and its frequency stabilization on an external reference has been achieved. © 2007 Optical Society of America

OCIS codes: 190.4970, 190.4400.

Optical parametric oscillators (OPOs) are convenient sources for generating tunable coherent radiation in various spectral domains from the visible to the mid-infrared. However, the development of continuous-wave (cw), singly resonant optical parametric oscillators (SROPOs) has long been hindered by the high oscillation thresholds of these systems.<sup>1</sup> The development of periodically poled materials has completely changed the situation, allowing the realization of efficient cw SROPOs with reasonable thresholds ( $\sim 1$  W) and a good stability.<sup>2</sup> More recently, the use of single-mode pump lasers allowed the generation of monomode signal and idler radiation.<sup>3</sup> Many applications such as high-resolution spectroscopy<sup>4</sup> or quantum information processing techniques<sup>5,6</sup> using rare-earth ions embedded in solid-state matrices<sup>7</sup> or color centers in diamond<sup>8</sup> require the development of such sources in the visible range. The simplest solution to this issue would be the direct pumping of a SROPO with a widely available 532 nm laser. Then, unfortunately, the nonresonant idler wave lies in the mid-infrared (above  $4 \mu\text{m}$ ), where common efficient materials such as periodically poled  $\text{LiNbO}_3$  (PPLN) significantly absorb,<sup>9</sup> leading to an increase of the OPO threshold. Moreover, the OPO is then far from degeneracy, thus further increasing the threshold, which can then reach the nonlinear material damage threshold. Until now, this problem was commonly avoided by building OPOs emitting in the near infrared and frequency doubling the idler in a second resonant cavity.<sup>10,11</sup> However, this strongly complicates the system and reduces its overall efficiency.<sup>12</sup> Another solution has been explored in which the signal is added to the remaining pump.<sup>13</sup> Here we focus on the recently developed periodically poled near stoichiometric  $\text{LiTaO}_3$  (PPSLT), which is suspected of exhibiting less absorption above the  $4 \mu\text{m}$  domain and a higher damage threshold than PPLN<sup>14</sup> while still exhibiting a strong nonlinearity. It has already

been used to build a visible OPO pumped by a nanosecond 532 nm pulsed laser.<sup>15</sup> Additionally, this crystal has been shown to be relatively immune to photo-refractive damage.<sup>16</sup> In previous work,<sup>17</sup> we successfully used this crystal to build a SROPO emitting 1.2 W, 70  $\mu\text{s}$  long pulses in the red and pumped in the green. The goal of the work reported here is to investigate the possible operation of such a green-pumped red SROPO in the cw regime and to analyze its spectral purity, tunability, and stability for applications where ultrahigh spectral purity is mandatory.

Our experimental setup is schematized in Fig. 1. The OPO cavity is a 113 cm long ring cavity. Mirrors  $M_1$  and  $M_2$  have a 150 mm radius of curvature, and mirrors  $M_3$  and  $M_4$  are plane. The signal waist is 37  $\mu\text{m}$ . The angle of incidence on the concave mirrors is limited to  $5^\circ$  to reduce astigmatism. All mirrors are designed to exhibit a reflectivity larger than 99.8% around 610 nm and a transmission larger than 95%

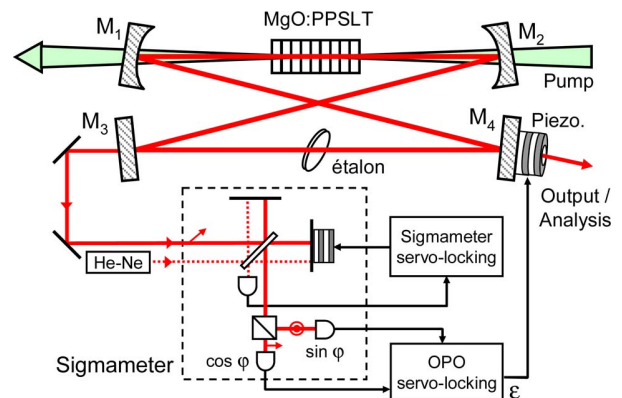


Fig. 1. (Color online) Experimental setup showing the four-mirror OPO cavity as well as the sigmameter and the servo loop for OPO frequency stabilization. The sigmameter delivers two interference signals in quadrature used to monitor the OPO frequency variations. The sigmameter path difference is locked to a stabilized He-Ne laser.

# Single mode injection seeded Nd:YAG oscillator with an adjustable pulse length between 20 and 50 ns

L. Cabaret and C. Drag<sup>a</sup>

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

Received: 11 July 2006 / Accepted: 25 October 2006  
Published online: 20 December 2006 – © EDP Sciences

**Abstract.** Highly stable single axial mode operation is obtained in a pulsed injection seeded oscillator with an adjustable pulse length from 20 ns to more than 50 ns, at a constant output energy. The adjustment principle is described experimentally and analysed theoretically. The peak to peak time jitter added to a slow time drift is of the order of 1 nanosecond for a 20 nanoseconds pulse length.

**PACS.** 42.55.-f Lasers – 42.60.-v Laser optical systems: design and operation – 42.60.Lh Efficiency, stability, gain, and other operational parameters

## 1 Introduction

Long pulse single mode lasers are interesting for obtaining both high resolution and high peak power. When nonlinear effects have to be used to give access to new laser frequencies, the best pulse length roughly ranges from ten to a hundred nanoseconds ([1,2] in the case of optical parametric oscillator); in many cases, such a duration may give rise to enough peak power without needing a high output energy. If the resolution is only limited by the pulse duration (Fourier limited), the fundamental laser source will have – for a Gaussian pulse shape – a linewidth of around 20 to 4 MHz. This resolution is useful for various high-resolution spectroscopic applications where continuous-wave (cw) counterparts have insufficient power. Long pulses are easily produced by a high repetition rate, moderate gain, Nd:YAG laser, for instance. A certain pulsewidth tuning is possible by changing the repetition rate of the laser [3]. However, for low repetition rate applications (i.e. when the pulses have to be amplified up to the 100 mJ level or more), this solution is certainly not optimized. Only a small part of the pulses is useful and the average power is too much high, leading to a quite low efficiency and to possible thermal problems. In this prospect, we have built a single axial mode, TEM<sub>00</sub> Nd:YAG oscillator, with a pulse width tuning possibility ranging from 20 to 50 ns. This driver is adapted to a low repetition rate (20 Hz) flashlamp pumped amplifier delivering more than 100 mJ of output energy. In a multipass scheme (two or four passes), the energy of the driver may be as low as a fraction of millijoule in order to extract most of the energy of a standard Nd:YAG flashlamp pumped laser head (QUANTEL model SF410-07A). The measured depolar-

ization during the amplification with a two pass scheme is less than 1%. The amplified output beam is planed to be first frequency doubled and subsequently sent to pump either a single mode optical parametric oscillator (OPO) or a titanium sapphire laser. To extend the frequency domain, a part of the fundamental beam can be used for nonlinear mixing with the OPO (or Ti:Sa) beam. In our case, one application of the system will be the “photodetachment microscopy” [4] which requires single longitudinal mode excitation (less than 1 mK).

## 2 Experimental set-up

The scheme of the oscillator is given Figure 1. The cavity has a stable linear geometry with a plane – concave pair of mirrors. The radius of curvature of the concave mirror (1 meter) and the effective cavity length (0.17 meter) lead to a stability parameter  $g_1g_2$  of about 0.83, in a region of the stability diagram which is a little bit sensitive to intracavity thermal lens variations. Compactness reasons do not allow us to operate in the best stability region, around  $g_1g_2 = \frac{1}{2}$ . However, in our configuration, the misalignment sensitivity is not too high.

The amplifying medium is formed by a half-cylinder of Nd:YAG (4 mm diameter). The cylindrical part is fine grounded to eliminate possible parasitic emission modes and the rear plane face is  $R_{max}$  coated at the pump wavelength (808 nm) to assure a double pass for the diode pumping beam [5]. The main advantages of this geometry are the simplicity of the diode positioning and the rather good gain distribution. However, it is certainly not the best solution for obtaining an optimized overlapping between the cavity mode and the pumped volume. The

<sup>a</sup> e-mail: cyril.drag@lac.u-psud.fr

## **Images of a photoelectron interfering with itself: the photodetachment microscope**

CHRISTOPHE BLONDEL\*, WALID CHAIBI, CHRISTIAN DELSART  
and CYRIL DRAG

Laboratoire Aimé-Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique,  
Bâtiment 505, F-91405 Orsay cedex, France

*(Received 15 March 2006; in final form 25 April 2006)*

An electron emitted from a pointlike source, when submitted to uniform acceleration by an electric field, can follow several trajectories to the point where it is detected. The corresponding interference pattern has been observed in a photodetachment experiment. Fitting the pattern with the squared Green function of the uniform acceleration problem makes it possible to perform electron spectrometry with a  $1\ \mu\text{eV}$  accuracy. This has been used for electron affinity measurements, both on atomic anions and with a molecular one.

Photodetachment microscopy began as a suggestion made by theorists [1], that during the detachment of an electron from a negative ion in the presence of an electric field, the electron would be able to follow several trajectories to the detector, and that this situation would produce an interference pattern. The suggestion was made that ‘under favourable conditions, this pattern could be observed in a direct experiment’. The proposed experimental set-up included a narrow ion beam intersected by a focused laser beam, which would provide the pointlike source of photoelectrons from which the electron interference would develop [2].

This was actually the principle of the photodetachment microscope that we built between 1993 and 1995, but we had to take into account the fact that neither can an ion beam be infinitely narrow, nor can a laser beam be focused to a point [3]. The region in which photodetachment occurs is a volume, and it is essential, in order not to blur the interference pattern, that the dimensions of this volume transverse to the applied DC electric field be smaller than the expected distance between interference fringes. The size of the pattern, hence the fringe interval, can be increased by putting the detector at large distances, however magnification goes only as the square root of the distance. One also wants to make sure that the number of fringes in the interference pattern will be larger than two, and that the finite spectral width of the excitation process will not smear the pattern out. All these conditions determine

---

\*Corresponding author. Email: christophe.blondel@lac.u-psud.fr



# High precision measurement of the $^{32}\text{SH}$ electron affinity by laser detachment microscopy

Walid Chaibi, Christian Delsart, Cyril Drag, Christophe Blondel \*

Laboratoire Aimé-Cotton (UPR CNRS 3321), Université Paris XI, bâtiment 505, F-91405 Orsay cedex, France

Received 7 April 2006; in revised form 23 May 2006

Available online 2 June 2006

## Abstract

The photodetachment microscopy technique, which was previously used with the  $\text{OH}^-$  molecular anion, is applied successfully to the  $\text{SH}^-$  ion with a single-mode dye laser. The interferograms of two rotational thresholds corresponding to particular detachment transitions of the  $\text{SH}^-(X^1\Sigma^+; v=0) \rightarrow \text{SH}(X^2\Pi_{3/2, 1/2}; v=0)$  band have been recorded. With a double-pass scheme of the laser excitation on the ion beam, pairs of interference patterns are obtained, the 2D fitting of which provides us with a new recommendable value of the electron affinity of  $^{32}\text{SH}$ ,  ${}^eA = 18669.543(12) \text{ cm}^{-1}$ , i.e., 2.3147282(17) eV. The precision on the determination of  ${}^eA$  has been increased by three orders of magnitude in comparison with the previous 1981 determination retained by the most recent review on molecular electron affinities.

© 2006 Elsevier Inc. All rights reserved.

PACS: 32.10.Hq; 32.80.Gc; 03.75.-b; 07.78.+s

Keywords: Electron affinity; Photodetachment; Electron interference

## 1. Introduction

Electron affinities ( ${}^eA$ ) of atoms and molecules are as important characteristics as ionization energies, but their measurement requires special methods, and their theoretical calculation must take special care of electron correlations. An additional difficulty with molecules stems from their vibrational and rotational degrees of freedom. That results in intricate series of detachment thresholds that complicate the study of the photo-excitation of molecular anions. Among these thresholds, it is a challenge to identify the particular threshold corresponding to  ${}^eA$ , i.e., to the energy difference between the lowest rovibrational state of the neutral and the lowest rovibrational state of the corresponding negative ion.

Until now, the attempts to determine the electron affinity  ${}^eA$  of the  $\text{SH}$  radical used the characteristics of

the total photodetachment cross-section. A measurement was performed in 1988 by photodetachment with a tunable dye laser of trapped  $\text{SH}^-$  anions in the uniform static magnetic field of a Penning ion trap [1]: a preliminary value  ${}^eA = 18666.4(2) \text{ cm}^{-1}$  was derived from high resolution data near individual rotational thresholds. Rather curiously, the CRC Handbook [2] retained a value previously obtained by the same team,  ${}^eA = 18666.44(03) \text{ cm}^{-1}$ , which was only mentioned in a conference abstract [3], but not confirmed. Neither of these two values were retained in the most recent review on the molecular electron affinities [4]. Actually, the present work confirms that even in the more careful estimate of the error bar, their attached uncertainty may have been more than one order of magnitude overoptimistic.

The most recent photodetachment experiment done with  $\text{SH}^-$  relied on the selection of near-threshold photodetachment events, in a ZEKE (zero kinetic energy) scheme, but no value of  ${}^eA$  was reported, though apparently a value of  $18670(2) \text{ cm}^{-1}$  can be extracted from the published

\* Corresponding author. Fax: +33 1 69 35 21 00.

E-mail address: [christophe.blondel@lac.u-psud.fr](mailto:christophe.blondel@lac.u-psud.fr) (C. Blondel).

# The fine structure of S and S<sup>-</sup> measured with the photodetachment microscope

C Blondel, W Chaibi, C Delsart and C Drag

Laboratoire Aimé-Cotton, Centre national de la recherche scientifique bâtiment 505, F-91405 Orsay cedex, France

E-mail: [christophe.blondel@lac.u-psud.fr](mailto:christophe.blondel@lac.u-psud.fr)

Received 19 December 2005, in final form 3 February 2006

Published 27 February 2006

Online at [stacks.iop.org/JPhysB/39/1409](http://stacks.iop.org/JPhysB/39/1409)

## Abstract

Photodetachment microscopy of a beam of <sup>32</sup>S<sup>-</sup> ions makes it possible to measure the detachment thresholds corresponding to different fine-structure levels of the negative ion S<sup>-</sup> and the neutral atom S. The electron affinity of sulfur, at 2.077 eV, is well suited for detachment by a tunable dye laser, which provides a third way of measuring neutral S fine structure, besides VUV spectroscopy of S I lines and direct fine-structure resonance spectroscopy. The fine-structure intervals are found to be 48 353.52(34) m<sup>-1</sup> for the <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub>–<sup>2</sup>P<sub>3/2</sub> energy difference in S<sup>-</sup>, and 39 605.87(32) m<sup>-1</sup> for the <sup>3</sup>P<sub>1</sub>–<sup>3</sup>P<sub>2</sub> one in S (with expanded uncertainties), consistent with an independent measurement of the <sup>3</sup>P<sub>0</sub>–<sup>3</sup>P<sub>1</sub> interval. The new recommended electron affinity for isotope 32 of sulfur is 1675 297.60(42) m<sup>-1</sup>, or 2.077 104 18(71) eV.

## 1. Introduction

Photodetachment microscopy relies on the analysis of electron interferograms obtained by photodetachment of a negative ion in the presence of an electric field (Demkov *et al* 1981, Blondel *et al* 1996, 1999). Photodetached electrons are emitted with an initial kinetic energy  $\epsilon$  which is just the difference between the excitation energy and the electron affinity. Due to the sensitivity of the interference pattern to  $\epsilon$ , photodetachment microscopy now appears as the most accurate method for electron affinity measurements (Blondel *et al* 2005).

Photodetachment microscopy was used to measure the electron affinities of O, Si, S (Blondel *et al* 2005), F (Blondel *et al* 2001a), and the OH radical (Goldfarb *et al* 2005). For oxygen, detachment was studied from the two fine-structure states <sup>2</sup>P<sub>3/2</sub> and <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub> of the O<sup>-</sup> negative ion, which led to an improved value of the negative ion fine structure (Blondel *et al* 2001b). This work presents similar fine-structure measurements made on S<sup>-</sup>, together with new data on the fine structure of neutral sulfur, obtained by detachment to the upper fine-structure levels <sup>3</sup>P<sub>1</sub> and <sup>3</sup>P<sub>0</sub> of S. In oxygen, the fine structure of the neutral was already so well

# Single-frequency quasi-continuous red radiation generated by a green-pumped singly resonant optical parametric oscillator

Sofiane Bahbah, Fabien Bretenaker, and Cyril Drag

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

Received December 1, 2005; revised January 31, 2006; accepted February 7, 2006; posted February 9, 2006 (Doc. ID 66313)

We demonstrate the operation of a quasi-continuous-wave optical parametric oscillator (OPO) in the red part of the visible spectrum by direct pumping from a frequency-doubled quasi-continuous-wave Nd:YAG laser. The OPO is singly resonant and based on a MgO-doped periodically poled stoichiometric lithium tantalate crystal. A single-frequency 1.2 W output power is obtained when an etalon is inserted inside the cavity.

© 2006 Optical Society of America

OCIS codes: 190.4970, 190.4400.

The development of continuous-wave (CW), singly resonant optical parametric oscillators<sup>1</sup> (SROPOs) has long been hindered by the unavailability of efficient high-quality nonlinear materials with sufficiently high damage thresholds and good quality multispectral antireflection coatings. The development of periodically poled materials has completely changed the situation, allowing the development of cw, efficient, and stable SROPOs.<sup>2</sup> More recently, the use of single-mode pump lasers allowed the generation of monomode signal and idler radiation.<sup>3</sup> Many applications such as high-resolution spectroscopy or the development of quantum information processing techniques using rare-earth ions embedded in solid-state matrices<sup>4</sup> or color centers in diamond<sup>5</sup> would greatly benefit from the development of such sources in the visible range. To reach this spectral domain, single-frequency 532 nm lasers have been used to pump SROPOs emitting in the near infrared.<sup>6</sup> The idler radiation, which is also single frequency, can then be frequency doubled in a second resonant cavity to reach the desired part of the visible spectrum.<sup>7</sup> The need for a second resonant cavity strongly complicates the system and reduces its overall efficiency. One may consequently wonder whether it would be possible to directly reach the red part of the visible spectrum by building a SROPO pumped by a green laser. One problem that occurs then comes from the fact that the idler wavelength will lie in the midinfrared, where common efficient materials such as periodically poled LiNbO<sub>3</sub> strongly absorb.<sup>8</sup> However, recently, periodically poled near stoichiometric LiTaO<sub>3</sub> (PPLT) has been shown to exhibit a high nonlinearity, a relative immunity to photorefractive damage,<sup>9</sup> and is suspected of exhibiting less absorption in the 3–4 μm domain than LiNbO<sub>3</sub>.<sup>10</sup> Such a PPLT crystal has recently been used to build a visible OPO pumped by a nanosecond 532 nm pulsed laser.<sup>11</sup> The goal of the work reported here is to investigate the potentialities of PPLT to build a cw single-frequency SROPO for spectroscopic applications. To this aim, we choose to work in the quasi-cw regime to take advantage of high available pump powers at 532 nm in order to observe the influence of

the idler absorption without being sensitive to thermal effects.

The experimental setup that we used is schematized in Fig. 1(a). The optical parametric oscillator (OPO) cavity is 113 cm long. Mirrors M<sub>1</sub> and M<sub>2</sub> have a 150 mm radius of curvature, and mirrors M<sub>3</sub> and M<sub>4</sub> are plane. In a first experiment, all mirrors are designed to exhibit a maximum reflectivity (larger than 99.8%) around 610 nm, a transmission larger than 95% at 532 nm, and between 3 and 4.5 μm. The angle of incidence on the mirrors is 5°, permitting us to neglect astigmatism. The nonlinear crystal is a 0.5 mm thick, 30 mm long MgO:PPLT crystal manufactured by HC Photonics. It exhibits five different poling periods, ranging from 11.55 to 12.95 μm, designed to lead to quasi-phase-matching conditions for signal wavelengths ranging from 640 to 600 nm when heated at 130°C and pumped at 532 nm. This crystal is antireflection coated for the pump, signal, and idler wavelengths. In order to be able to pump this OPO with high powers without being disturbed by thermal effects, we chose in the present study to use a quasi-cw pump power. It is an intracavity doubled diode-pumped Nd:YAG laser<sup>12</sup> emitting 170 μs long pulses at a repetition rate of 40 Hz. The output power of this laser can be as large as 30 W, but the average output power is then only 200 mW, which limits the thermal effects induced by the pump in the OPO. Moreover, this laser can be made monomode by inserting an etalon inside the cavity. The pump beam is focused to a 53 μm waist inside the crystal. The signal beam has a waist equal to 37 μm at the same location. Figure 1(b) reproduces the evolution of the OPO threshold for the different poling periods, together with the corresponding signal and idler wavelengths. The threshold value increases from 2.85 to 13.7 W when the signal wavelength decreases from 640 to 601 nm. We computed the evolution of the SROPO threshold versus signal wavelength following Guha's model,<sup>13</sup> taking into account the Gaussian nature of the pump and signal beams, and the evolution of all the parameters versus signal wavelength. The result of this computation is reproduced as a dashed line in Fig. 1(b), where we

# Actively mode-locked optical parametric oscillator

Nicolas Forget

Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique, UPR 3321, Campus d'Orsay, Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France, and Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau, France

Sofiane Bahbah, Cyril Drag, and Fabien Bretenaker

Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique, UPR 3321, Campus d'Orsay, Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

Michel Lefèbvre

Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau, France

Emmanuel Rosencher

Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau, France, and Département de Physique, École Polytechnique, 91128 Palaiseau Cedex, France

Received October 4, 2005; revised December 16, 2005; accepted December 23, 2005; posted January 9, 2006 (Doc. ID 65148)

We report on what we believe to be the first demonstration of active mode locking of an optical parametric oscillator. An acousto-optic modulator is inserted into a nearly degenerate ( $\sim 1064$  nm) and doubly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled LiNbO<sub>3</sub> and pumped with the second harmonic of a quasi-continuous-wave single-frequency Nd:YAG laser. When the modulation frequency is matched to the free spectral range of the cavity (120 MHz), a pulsed regime is observed, with pulse durations as short as 700 ps. © 2006 Optical Society of America  
OCIS codes: 190.4970, 320.7090.

Mode locking of laser oscillators is a commonly used method of generating short optical pulses for applications in ultrafast spectroscopy, micromachining, ophthalmological surgery, etc. Efficient mode locking calls for laser materials that display large optical amplification bandwidths: Ti:sapphire in the 700–850 nm range, Yb:glass in the 980–1050 nm range, and Cr:ZnSe in the 2.1–2.3  $\mu\text{m}$  range have been used extensively recently. To address other spectral regions, solutions that use nonlinear materials such as optical parametric oscillators (OPOs) have been widely investigated. In their pioneering work, Becker *et al.*<sup>1</sup> showed, however, that because the nonlinear material does not store energy, direct OPO mode locking is unlikely. Instead, synchronously pumped optical parametric oscillation has been successfully implemented, in which the circulating signal in an OPO cavity is periodically amplified by the synchronous pulse train of a mode-locked laser.<sup>2</sup> However, the situation has changed drastically since the early work of Becker. New nonlinear optical materials, such as periodically poled LiNbO<sub>3</sub> (PPLN) and periodically poled KTi:OPO<sub>4</sub>, which display large nonlinear susceptibilities, have become available.<sup>3</sup> In an early Letter<sup>4</sup> on optical frequency comb generation, Diddams *et al.* demonstrated that a frequency-modulated degenerate OPO based on a PPLN crystal can produce and sustain large sidebands (3.5 THz) because of the large parametric gain available in these new materials. In this Letter, we demonstrate that direct active mode locking of an OPO can indeed be obtained by use of a quasi-continuous-wave pump source.

The basic idea is to modulate the intracavity losses of a cw-pumped OPO cavity near degeneracy where the parametric amplification bandwidth is large. For demonstration purposes, we have chosen a pumping wavelength of 532 nm and a nearly degenerate OPO configuration such that the signal and idler wavelengths are in a range near 1064 nm. This choice allows us to benefit from high-quality, common, and affordable optical materials for the OPO cavity elaboration. To evaluate the feasibility of OPO active mode locking, let us first derive a simplified model. We consider a singly resonant OPO with an intracavity periodic loss of pulsation  $\Omega$  and modulation depth  $\mu$ , described by the transmission  $T(t) = 1 - \mu \sin^2(\Omega t/2)$ . Far from the OPO's saturation, the nonlinear crystal behaves as a linear amplifier with a single-pass transmission equal to  $G = 1 + g$ , where  $g$  is the small-signal gain, and an amplification band-

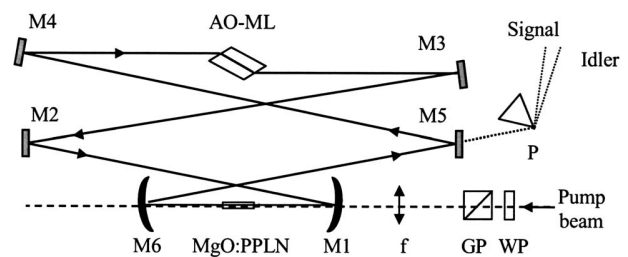


Fig. 1. Schematic of the experimental setup: WP, wave plate; GP, Glan polarizer; M1, M6, spherical mirrors ( $R = 250$  mm); M2–M4, high-reflectivity flat mirrors; M5, 1% output coupler; AO-ML, acoustic-optic mode locker; P, isosceles prism.

# The electron affinities of O, Si, and S revisited with the photodetachment microscope

C. Blondel<sup>a</sup>, W. Chaïbi, C. Delsart, C. Drag, F. Goldfarb<sup>b</sup>, and S. Kröger<sup>c</sup>

Laboratoire Aimé-Cotton<sup>d</sup>, Centre national de la recherche scientifique, bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

Received 31 January 2005 / Received in final form 30 March 2005

Published online 12 May 2005 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2005

**Abstract.** Photodetachment microscopy has been performed on a beam of  $^{32}\text{S}^-$  ions. Analysing the electron images obtained, we find that the electron affinity measurements performed with the photodetachment microscope contain a small bias, due to the difference between the actual and assumed values of the applied electric field. Having a measure of this bias, we can reanalyse older data recorded on the negative ions  $\text{O}^-$  and  $\text{Si}^-$  along similar lines. As a consequence, the values of the electron affinities of Oxygen, Silicon and Sulfur can be given with an improved accuracy. The recommended values (with expanded uncertainties) are now  $11\,784.676(7)\text{ cm}^{-1}$  for  $^{16}\text{O}$ ,  $11\,207.246(8)\text{ cm}^{-1}$  for  $^{28}\text{Si}$ , and  $16\,752.974(5)\text{ cm}^{-1}$  for  $^{32}\text{S}$ , i.e.  $1.461\,113\,5(12)$ ,  $1.389\,521\,3(13)$  and  $2.077\,104\,0(9)$  eV, respectively.

**PACS.** 32.80.Gc Photodetachment of atomic negative ions – 03.75.-b Matter waves – 07.78.+s Electron, positron, and ion microscopes; electron diffractometers – 32.10.Hq Ionization potentials, electron affinities

## 1 Measuring electron affinities with the photodetachment microscope

### 1.1 Photodetachment microscopy

Photodetachment of a negative ion may be described as one of the most simple processes in atomic physics. Absorption of a photon brings one electron into a structureless detachment continuum. Interaction of this electron with the residual neutral is so weak that the continuum state can be described, in a very good approximation, as a free spherical wave. Photodetachment provides the experimentalist with nearly perfect pointlike free-electron sources.

When an electron is emitted from such a source set in a homogeneous external electric field, its trajectories become parabolas. As a well-known theorem in ballistics, at a fixed initial energy only no or two parabolas can reach a given detection point. An electron interference phenomenon may thus occur, which will give rise to ringlike fringe patterns. Such interference patterns were observed for the first time from the negative ion  $\text{Br}^-$  in

1996, following a suggestion dating back to 1981 [1]. This was the birth of ‘photodetachment microscopy’ [2].

Having an interference pattern instead of an electron spot as the output of a photodetachment process makes it possible to measure the photoelectron energy  $\epsilon$  with interferometric accuracy. Uncertainties down to  $1\ \mu\text{eV}$  can be reached [3] by fitting the obtained electron images with what is expected from the propagation from a pointlike source in a uniform acceleration field [4]. Subtracting the electron energy  $\epsilon$  from the energy of the absorbed photon  $h\nu$ , one can find the electron affinity  ${}^eA$  of the species with a similar accuracy [5]:

$${}^eA = h\nu - \epsilon. \quad (1)$$

### 1.2 Doppler effect

A difficulty encountered when implementing the above method is that the photon energy seen by the ion is not the same as the one measured in the laboratory. Whatever the settings, the exact angle at which the laser and ion beam intersect cannot be known with a very good accuracy. To circumvent this difficulty, a double-pass scheme is used, in which the laser illuminates the ion beam twice, in counterpropagating directions. A scheme of the experimental set-up used for that purpose is shown in Figure 1.

Since photodetachment at the first laser crossing is far from being saturated, two distinct electron spots are produced from the same ion beam. An example of such a pair of spots is shown in Figure 2. Their fitting to the theoretical formula yields two photoelectron energies  $\epsilon$  and  $\epsilon'$ .

<sup>a</sup> e-mail: christophe.blondel@lac.u-psud.fr

<sup>b</sup> Present address: Institut für Experimentalphysik, Universität Wien, Boltzmannngasse 5, 1090 Wien, Austria.

<sup>c</sup> Present address: Institut für Atomare und Analytische Physik, Technische Universität Berlin, Hardenbergstr. 36, 10623 Berlin, Germany.

<sup>d</sup> URL: <http://www.lac.u-psud.fr>



# Photodetachment microscopy of the $P$ , $Q$ , and $R$ branches of the $\text{OH}^- (v=0)$ to $\text{OH} (v=0)$ detachment threshold

Fabienne Goldfarb,<sup>a)</sup> Cyril Drag, Walid Chaibi, Sophie Kröger,<sup>b)</sup> Christophe Blondel,<sup>c)</sup> and Christian Delsart

Laboratoire Aimé-Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique, Bâtiment 505, F-91405 Orsay cedex, France<sup>d)</sup>

(Received 6 April 2004; accepted 5 October 2004; published online 14 December 2004)

A photodetachment experiment is performed on the  $v=0 \rightarrow v=0$   $\text{OH}^-$  detachment threshold. The weak  $O$  and  $S$  branches provide a signal strong enough to make amplitude measurements on all five  $O$ ,  $P$ ,  $Q$ ,  $R$ , and  $S$  branches possible, which are used to fix the formulas for their relative intensities. Photodetachment microscopy is applied to 15 different thresholds of the  $P$ ,  $Q$ , and  $R$  branches. The quantitative analysis of the interference patterns obtained does not show any effect of the dipole moment of  $\text{OH}$ , but yields a new measurement of the rotational parameters of  $\text{OH}^- (v=0)$  and of the electron affinity of the molecule. The new recommended value for the electron affinity of  $^{16}\text{O}^1\text{H}$  is  $14\,740.982(7) \text{ cm}^{-1}$  or  $1.827\,648\,7(11) \text{ eV}$ . © 2005 American Institute of Physics.  
[DOI: 10.1063/1.1824904]

## I. INTRODUCTION

### A. Molecular photodetachment microscopy

Photodetachment microscopy, which consists of the observation of the electron interferograms produced when a negative ion undergoes photodetachment in the presence of an electric field, has now been applied to several atomic anions.<sup>1–3</sup> Though this new kind of electron interferometry made it possible to develop a novel method for measuring electron affinities,<sup>4,5</sup> the electron images recorded so far have revealed no signature of the particular ions that were used, since every obtained image could be perfectly fitted by the model of pointlike free-electron emission in the presence of an external electric field. In other words, no perturbation due to the presence of the residual neutral core could be observed.

Looking for the validity limits of the free-electron model, one can follow several ways. The first one is to use bigger anions, so as to make the perturbation of the outgoing electron motion larger. In this direction, a photodetachment microscopy experiment is presently being performed at Laboratoire Aimé-Cotton with the anion  $\text{S}^-$ . Another way has been to change the asymptotic behavior of the neutral core potential. With a molecule, the dominant term in the potential felt by the outgoing electron is the  $1/r^2$  potential created by its electric dipole, which has a longer range than the  $1/r^4$  polarization term, and perturbations of the electron interferograms can be expected.<sup>6</sup>

$\text{OH}^-$  was chosen along these lines as a test molecular anion, the photodetachment of which would eject an electron

in the presence of a dipolar neutral molecule. Preliminary results of this experiment were published in 2002.<sup>7</sup> The purpose of the present paper is to give a complete account of the experimental results, namely, (i) a description of the relative intensities of the rotational thresholds, (ii) a more accurate determination of the electron affinity  $^eA$  of  $\text{OH}$ , (iii) new measurements of the rotational parameters of  $\text{OH}^-$ , and (iv) a report about the search for dipolar effects.

### B. The history of $\text{OH}^-$ photodetachment

Besides being of particular interest for photodetachment microscopy because of (i) the dipolar character of the neutral and (ii) a large rotational parameter that makes the separation of the rotational detachment thresholds comfortable on the energy scale,  $\text{OH}^-$  has also been the subject of many photodetachment experiments<sup>8–12</sup> that have become classics in the field.

Correspondingly, much theoretical effort has been devoted to the interpretation of the photodetachment spectra, which, in early times, were of course not rotationally resolved and required some modeling of the observed branches for any determination of, e.g., the electron affinity.<sup>8,13</sup> However, high-resolution photodetachment spectroscopy has now reached so high an accuracy<sup>12</sup> that the electron affinity of  $\text{OH}$  was by far the best known of all molecular electron affinities<sup>14</sup> even before it was remeasured by photodetachment microscopy.<sup>7</sup>

As for their internal excitation spectrum,  $\text{OH}$  and  $\text{OH}^-$  are also very well known. Several reviews on the spectroscopy of the  $\text{OH}$  radical have determined the experimental spectrum of the first vibrationally and rotationally excited levels down to a few  $\text{mk}$  ( $1 \text{ mk} \equiv 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ).<sup>15,16</sup> The rotational parameters of the  $\text{OH}^-$  anion have been measured by direct spectroscopy in the gas phase.<sup>17</sup> All these existing data

<sup>a)</sup>Present address: Institut für Experimentalphysik, Universität Wien, Boltzmannngasse 5, A-1090 Wien, Austria.

<sup>b)</sup>Present Address: Institute für Atomare und Analytische Physik, Technische Universität Berlin, Hardenbergstr. 36, 10623 Berlin, Germany.

<sup>c)</sup>Electronic mail: christophe.blondel@lac.u-psud.fr

<sup>d)</sup>URL: <http://www.lac.u-psud.fr>

## Controlling the formation of cold molecules via a Feshbach resonance

B. LABURTHE TOLRA, N. HOANG, B. T'JAMPENS, N. VANHAECKE, C. DRAG, A. CRUBELLIER, D. COMPARAT and P. PILLET(\*)

*Laboratoire Aimé Cotton(\*\*), CNRS, Bât. 505, Campus d'Orsay  
91405 Orsay Cedex, France*

(received 16 May 2003; accepted in final form 5 August 2003)

PACS. 32.80.Pj – Optical cooling of atoms; trapping.

PACS. 33.55.Be – Zeeman and Stark effects.

PACS. 34.20.-b – Interatomic and intermolecular potentials and forces, potential energy surfaces for collisions.

**Abstract.** – Ultracold molecules are formed via photoassociation in a polarized sample of cold cesium atoms. The rate of molecule formation is controlled by tuning a magnetic field. The radial dependence of the colliding wave function is probed by the photoassociation spectroscopy technique. We have in this way observed the drastic influence of the magnetic field in a broad Feshbach resonance for  $f = 3$ ,  $m = 3$  colliding atoms and for magnetic fields up to 30 G.

*Introduction.* – Collisions play a major role in cold atomic samples such as atomic clocks, atomic interferometers or Bose-Einstein condensates (BEC) [1]. Controlling collisions, an old dream in atomic physics, has recently become possible in very sensitive samples of laser-cooled atoms, mainly through Feshbach resonances (FR), leading, for instance, to the achievement of Bose-Einstein condensation in  $^{133}\text{Cs}$  [2] or to a study of atom-molecule coherence in a BEC [3]. Very recently, FR has allowed the formation of stable molecules from a quantum degenerate fermionic gas [4].

The first experimental demonstration of collision control through FR has been done in a  $^{23}\text{Na}$  BEC, with the magnetic-field value as control knob [5]. Several similar ones have now been done with cold atoms [6]. Laser probing of a FR through molecular potential curves was used in the rubidium case [7], through Zeeman-resolved photoassociation (PA) spectroscopy. Laser-induced FR have been observed in sodium [8] and, more recently, a repulsive molecular curve has been used to probe cesium quasi-dimer formation [9] near a narrow FR.

In this paper, we describe an experiment which uses photoassociation (PA) as a tool to probe the radial wave function of two colliding  $f = 3$ ,  $m = 3$  cesium atoms, near a FR. The specificity of our experiment, as compared to previous similar ones [7, 8, 10], is the use, in the PA reaction, of a large number of molecular bound levels, previously studied by PA spectroscopy [11]. This allows us to study and thus to control in detail the radial variation of the collision wave function. By this technique, we observe, around 18 G, an important increase of the density of presence probability of the two atoms at short distance, which means an increase of the penetration of the colliding atoms. This results in a significant enhancement of the PA rate and, consequently, of the cold molecule formation rate.

---

(\*) E-mail: pierre.pillet@lac.u-psud.fr

(\*\*) Laboratoire Aimé Cotton is associated with Université Paris-Sud, web site: [www.lac.u-psud.fr](http://www.lac.u-psud.fr)

## Lu-Fano plot for interpretation of the photoassociation spectra

V. Kokoouline

*Department of Physics and JILA, University of Colorado, Boulder, Colorado 80309-0440*

C. Drag, P. Pillet, and F. Masnou-Seeuws

*Laboratoire Aimé Cotton, Université Paris XI and CNRS II, Orsay 91405, France*

(Received 18 December 2001; published 7 June 2002)

Recently, the method of Lu-Fano plots was extended to potentials with general  $R^{-n}$  asymptotic behavior. The aim of this paper is to discuss the efficiency of this method for the interpretation of experimental vibrational spectra of long-range diatomic molecules when two channels are coupled. A Lu-Fano analysis is implemented on experimental data for the  $\text{Cs}_2$   $0_u^+(6S+6P_{1/2,3/2})$  photoassociation spectra below the  $6S+P_{1/2}$  and  $6S+P_{3/2}$  dissociation limits. The parameters are fitted on level energies and predissociation widths, giving information about the asymptotic coefficients  $C_3$  for both channels and about a coupling parameter which determines the variation of predissociation widths as a function of detuning. This parameter can be extrapolated above the  $6S+P_{3/2}$  threshold to yield the fine-structure transition cross section between the two channels. The probability for such a transition in a model where hyperfine structure effects are neglected is found to be 0.54.

DOI: 10.1103/PhysRevA.65.062710

PACS number(s): 34.20.-b, 33.80.Gj, 33.20.-t, 34.20.Mq

### I. INTRODUCTION

Photoassociation spectroscopy in a sample of laser-cooled alkali-metal atoms has proven to be a very accurate tool for extracting information on the long-range interaction between atoms, yielding in particular, through the  $C_3$  coefficient, precise radiative lifetimes for the first  $^2P$  level of the alkali-metal atoms [1–6]. Once a rovibrational progression is unambiguously identified in the spectrum, various methods have been considered to fit molecular potentials to the measured energy levels and rotational constants. The difficulty lies in the determination of accurate potentials at short range, and can be overcome by use of purely asymptotic methods, such as the long-range analysis proposed by Le Roy and Bernstein [7]. The latter method is very efficient in case of levels close to the dissociation limit, as was demonstrated recently for the Ca photoassociation spectra [8]. Such a method assumes that no perturbation is present for the state considered, the levels corresponding to vibrational motion in a single channel. However, many observed spectra are more complex and require a multichannel analysis. The aim of the present paper is to show that generalized Lu-Fano plots [9] can provide an efficient tool with which to analyze spectra within a two-channel model. The technique of Lu-Fano plots was initially developed in the framework of the multichannel quantum defect theory (MQDT) [10–13] and used for interpretation of experiments with electron-ion collisions or Rydberg atoms. Recently Lu-Fano plots were generalized to potentials with non-Coulomb and in particular  $R^{-n}$ ,  $n > 2$  asymptotic behavior [14,15]. It was shown on numerical examples that two coupled vibrational progressions can be fitted by two generalized quantum defects and a coupling parameter. The latter can be extrapolated beyond a dissociation limit, yielding, for instance, accurate predictions for predissociation lifetimes [16]. The first aim of the present work is to apply the method of Lu-Fano plots to the analysis of an experimental molecular spectrum, and to check the accuracy

of the data obtained. The second aim is to discuss whether the fitted parameters can be extrapolated beyond dissociation thresholds and provide information on quantities such as scattering cross sections.

The photoassociation spectra of  $\text{Cs}_2$  molecules obtained by the Laboratoire Aimé Cotton group [6,17–19] exhibit many rovibrational progressions and several perturbations. The analysis of these progressions allowed for the determination of  $C_n$  parameters for the long-range interaction of atoms as well as for fitting molecular potential curves at smaller internuclear distances. The methods used were mainly Rydberg-Klein-Rees (RKR) procedures [18] or long-range analyses with the Le Roy–Bernstein formula. However some features in the spectra of  $0_u^+(6S+6P_{1/2,3/2})$  symmetry remained unexplained, due to the coupling between the two  $0_u^+(P_{1/2})$  and  $0_u^+(P_{3/2})$  channels. A possible way of overcoming this difficulty was to solve the multichannel Schrödinger equation as was done, for example, in Refs. [14,16,20]. The main disadvantage of this approach is that one needs to know the interatomic potentials and coupling matrix elements for the  $\text{Cs}_2$  dimer with great precision [14,21], well beyond the present achievements of accurate *ab initio* quantum chemistry calculations [22,23]. In practice, one proceeds [14,20,24] by trial and error through arbitrary small changes in the short distance potentials until the computed vibrational energy levels are in agreement with the experiment in a given energy range. Then, the fitted potential can be used to predict levels in another energy domain. This fitting procedure usually requires a lot of effort, especially in the present case where there are two coupled potentials and one  $R$ -dependent coupling term, and there is no unique solution.

However, small changes in the molecular potential by modifying the position of the repulsive wall result in a global shift of the vibrational progression. For highly excited levels this shift can be described by one parameter, similar to the quantum defect used in the analysis of Rydberg series for

# Entangled-cavity optical parametric oscillator for mid-infrared pulsed single-longitudinal-mode operation

C. Drag, A. Desormeaux, M. Lefebvre, and E. Rosencher

Office National d'Etudes et de Recherches Aéronautiques, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex, France

Received February 11, 2002

We report a pulsed doubly resonant optical parametric oscillator that uses an original entangled-cavity geometry. This compact source (total volume of 1 L, including the pump laser) displays single-frequency operation (linewidth, <100 MHz), a high repetition rate (>10 kHz), low threshold (<10  $\mu\text{J}$ ), and wide tuning in the mid-infrared. These properties qualify pulsed doubly resonant optical parametric oscillators as powerful tools for applications in such fields as nonlinear spectroscopy, lidar, and pollutant detection. © 2002 Optical Society of America

OCIS codes: 190.4970, 190.1900.

Coherent tunable single-frequency mid-infrared sources are of prime importance for such applications as pollutant detection, remote sensing, and nonlinear spectroscopy. Until now, three main types of sources have been available for such applications<sup>1,2</sup>: (i) semiconductor lasers using either interband transitions in small-gap semiconductors<sup>3</sup> (e.g., PbSnSe, InAsSb) or intersubband transitions<sup>4</sup> (so-called quantum cascade lasers) that display as many as a few hundred milliwatts of output peak power and rather small tunability (a few tens of nanometers), (ii) difference-frequency generation setups that display low output powers (typically a few microwatts),<sup>5</sup> and (iii) cw optical parametric oscillators (OPOs).<sup>6</sup> None of these sources, however, is fit for operations such as lidar, for which high-power (hundreds of watts) nanosecond pulses are needed. Conversely, nanosecond OPOs operating with quasi-phase-matched crystals such as periodically poled lithium niobate display a low threshold over wide spectral ranges and thus allow new compact high-repetition-rate sources to be designed. Nonetheless, the multifrequency behavior of pulsed OPOs is detrimental for most of these applications that require a typical linewidth of 100 MHz. Two alternatives for fulfilling the spectral purity requirement have been proposed: the injection-seeding technique and the intracavity spectral filtering method. However, in the first case, tuning is restricted to the range of the seeder source,<sup>7</sup> whereas the threshold of oscillation is dramatically increased with the second.<sup>8–10</sup> To overcome these drawbacks, researchers recently proposed and successfully operated dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillators (DC-DROPOs).<sup>11,12</sup> Indeed, DC-DROPOs provide single-frequency operation as well as a low threshold of oscillation and thus a potential for high compactness. In this Letter we report a novel architecture of a compact nanosecond source that leads to single-longitudinal-mode output from a semimonolithic linear DC-DROPO; most of the potential of this approach (e.g., for compactness and high repetition rate) is demonstrated.

With a DC-DROPO, the signal and idler fields experience two different cavities and thus display different

free spectral ranges. The optical lengths of the signal and idler cavities,  $L_s$  and  $L_i$ , respectively, can be engineered so that within the parametric gain bandwidth (PBG) a single exact coincidence occurs between the signal and the idler modes on which the OPO oscillates and the mode overlap over partial coincidences is too small to allow other pairs of modes to oscillate (see Fig. 1). We refer to this procedure as mode overlap engineering.<sup>11</sup>

Figure 2 shows a schematic of the experimental setup. A compact passively  $Q$ -switched Nd:YAG laser (Innolight Model Mephisto Q) based on a nonplanar ring oscillator delivers single-frequency (1064-nm) output pump pulses ( $\sim 20 \mu\text{J}$ , 14 ns) at 12 kHz. Passing the Gaussian beam ( $M^2 = 1.1$ ) through a Faraday isolator prevents power-dependent reflections of the laser as a result of a sum-frequency process between the backward-traveling signal and idler waves. Next, we use a half-wave plate in combination with a Glan polarizer to adjust the input energy. The pump beam is focused to a  $75\text{-}\mu\text{m}$  spot in the crystal (radius at  $1/e^2$  of the peak intensity) by an antireflection-coated silica lens (150-mm focal length). The crystal (6 mm long, 3 mm wide, and 0.5 mm thick) is multiple-grating periodically poled lithium niobate (Crystal Technology) composed of three grating sections with 27.8-, 28.2-, and 28.7- $\mu\text{m}$  spatial periods. We heat the crystal to 110 °C with two Peltier elements to avoid any photorefractive damage.

Doubly resonant operation occurs within an entangled cavity composed of four mirrors that are placed symmetrically on each side of the crystal. The signal and idler waves oscillate between pairs

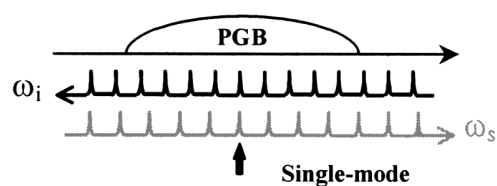


Fig. 1. Principle of mode selection in DC-DROPOs.  $\omega_i$  and  $\omega_s$  are the idler and signal frequencies.

# Widely tunable single-frequency pulsed optical parametric oscillator

I. Ribet, C. Drag, M. Lefebvre, and E. Rosencher

Office National d'Etudes et de Recherches Aéronautiques, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex, France

Received August 23, 2001

The spectral output of a nanosecond dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillator has been investigated versus the relative length of the signal and idler cavities. Regions of stable single-frequency operation are determined by use of a type II phase-matched KTP crystal and compared with the predictions of a mode-overlap model. A wide mode-hop-free tuning range is obtained over 40 GHz, limited only by piezoelectric biases. Furthermore, discrete tuning is investigated over the full parametric gain curve. For demonstration purposes, experiments are performed in the domain that is most inclined to multifrequency emission, i.e., near degeneracy. © 2002 Optical Society of America

OCIS codes: 190.4970, 190.1900.

There is a persistent demand for single-frequency widely tunable coherent sources to deal with spectroscopy and related applications such as detection of open air pollutant species, remote sensing, and optical diagnostics based on linear and nonlinear processes. For these applications, optical parametric oscillators (OPOs) are very attractive because rugged and compact devices can be designed. Under continuous-wave (cw) pumping conditions, OPOs provide the high spectral quality that is actually expected<sup>1</sup>; nonetheless, the low power delivered by cw sources makes them inappropriate for addressing the problems of nonlinear spectroscopy. Pulsed pumping conditions lead to higher parametric gain, so nanosecond OPOs deliver high-intensity pulses over a wide domain of wavelengths, but their multifrequency behavior is detrimental for spectroscopic applications. Therefore alternatives for achieving single-frequency output from pulsed OPOs have been proposed. The injection technique leads to narrow-linewidth emission; unfortunately the tuning range is restricted to the range of the seeder source.<sup>2</sup> However, the addition of filtering elements inside the cavity<sup>3–6</sup> dramatically increases the threshold of oscillation. To solve these problems, Scherrer *et al.* recently proposed using a dual-cavity geometry.<sup>7</sup> In this Letter we show that, indeed, in accordance with our previously described theory, dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillators (DROPOs) lead to stable single-frequency parametric emission in the pulsed regime. Compared with our previous work, in this study a low threshold of oscillation combined with a wide mode-hop-free continuous tuning range (40 GHz) has been obtained by reduction of the pump-beam reflection. Furthermore, discrete frequency tuning is investigated over the full parametric gain curve (3 cm<sup>-1</sup>) for different lengths of the signal and idler cavities.

The principle of mode selection that takes place in DROPOs is depicted in Fig. 1. According to Giordmaine and Miller,<sup>8</sup> the axial mode distributions of the signal and idler fields are plotted on two opposite axes versus their respective frequencies,  $\omega_s$  and  $\omega_i$ . In such a diagram, only the resonances that are

coincident satisfy the energy-conservation condition ( $\omega_s + \omega_i = \omega_p$ , where  $\omega_p$  is the pump frequency). Hence, only those pairs of modes that are coincident are emitted. Figure 1 illustrates a simple case for which only one exact coincidence is within the parametric gain curve. Practically, the finite finesse of each cavity leads to a Lorentzian line shape of the signal and idler modes, yielding a partial mode overlap that can be characterized by the mode-overlap integral,  $\Delta S$  (see the shaded areas in Fig. 1). In the case of single-cavity DROPOs, one periodically finds a group of such modes that overlap sufficiently that they are emitted, leading to the well-known multifrequency, unstable behavior<sup>9</sup> that plagues DROPOs, designated the cluster effect. Furthermore, if type I phase matching is used, these effects are more dramatic near degeneracy, where the parametric gain bandwidth is huge and the free spectral ranges of the signal and idler are very close.

Using dual-cavity DROPOs allows one to adjust separately the optical paths at the signal and the idler frequencies. Thus, we can choose the two cavity lengths to (i) obtain a single exact coincidence and (ii) decrease neighboring-mode overlap below threshold within the parametric gain bandwidth. Obviously, the cavity-length difference cannot be increased too much without disturbance of the spectral output by another exact mode coincidence coming into the parametric gain bandwidth. Therefore, single-longitudinal-mode operation results from a trade-off between the imperfect mode overlap of neighboring modes and the influence of well spectrally separated

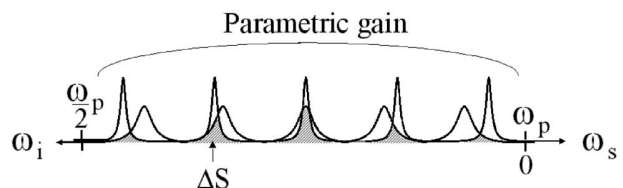


Fig. 1. Giordmaine–Miller diagram of a DROPO. The shaded areas are the signal–idler mode-overlap integrals ( $\Delta S$ ).

C. DRAG<sup>✉</sup>  
I. RIBET  
M. JEANDRON  
M. LEFEBVRE  
E. ROSENCHER

# Temporal behavior of a high repetition rate infrared optical parametric oscillator based on periodically poled materials

Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales, B.P. 72, 92322 Châtillon Cedex, France

Received: 23 April 2001

Published online: 19 September 2001 • © Springer-Verlag 2001

**ABSTRACT** The temporal behavior of a nanosecond pulsed singly resonant periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator has been studied both theoretically and experimentally. Taking into account the cylindrical symmetry of the system, a numerical model based on the Hankel transform has been developed. Good agreement is obtained between experiment and simulation. Moreover, the computation time is reduced roughly by a factor of 60 compared to the usual simulation software.

**PACS** 42.65.Yj; 42.72.Ai

## 1 Introduction

In the past few years the discovery of new non-linear optical materials, the improvements in the performance of solid-state lasers and progress in high-damage-threshold optics have stimulated renewed interest in optical parametric oscillators (OPOs). Recently, widely tunable low-threshold pulsed (nanosecond) demonstrations of OPOs based on quasi-phase-matched materials such as periodically poled lithium niobate (PPLN) have been numerous in the literature [1–5]. Quasi-phase-matched materials are very attractive because directions of much higher non-linearity become accessible and potentially broader tuning ranges can be obtained.

OPOs based on these new materials display a low threshold and thus allow new compact high repetition rate sources to be used. It has then become timely to investigate in detail the behavior of OPOs according to various physical parameters such as input power, pulse duration, . . . . Indeed, the high gain of these non-linear materials results in new effects such as strong conversion of signal and idler waves back into the pump waves or ‘cascading’ effects [6].

These effects influence strongly the efficiency of OPOs. For this reason, some computer simulations and numerical models have been published to interpret laboratory observations and to optimize OPOs’ design. Smith and co-workers [7] have constructed a numerical model of a nanosecond seeded OPO taking into account the different interactions in the crystal, non-linear coupling, pump depletion, birefringence, diffraction, walk-off and realistic spatial and temporal

beam profiles, with arbitrary cavity-mirror reflectivities and absorption losses in the crystal. The model was used to calculate the performance of a 532-nm-pumped KTP OPO and numerical results were compared with experimental measurements. The calculation program, named SNLO, may be downloaded from the web site of Sandia National Laboratory [8]. In a further publication the same authors describe an OPO with a walk-off-compensating crystal configuration [9] and new methods for modeling a broad-bandwidth, nanosecond OPO in the plane-wave approximation [10]. The spatial properties of the OPO output beam even at high conversion efficiencies, as well as the temporal dynamics of the spatial intensity distribution of OPO pulses, were also studied by Urschel and co-workers [11]. However, all these numerical models are computer-time-consuming and do not allow easy OPO cavity optimization procedures on laboratory computers.

In this paper, we report a numerical model taking into account the cylindrical symmetry of OPOs based on quasi-phase-matched materials, pumped by Gaussian or more generally cylindrical beams. In this case, due to the absence of walk-off, the isotropy of the non-linear crystal allows the use of a one-dimensional Hankel transform rather than a two-dimensional Fourier transform to evaluate spatial frequency components of the different electric fields. The use of cylindrical symmetry enables us to gain a factor of 60 over the calculating time compared to other models. We then compare our model with an experiment carried out with a singly resonant optical parametric oscillator (SROPO) with a 1-cm-long crystal of PPLN. The SROPO is pumped by a high repetition rate YAG laser source emitting at 1.064  $\mu\text{m}$ , in which one can vary independently the pulse duration and the power to study the dynamic behavior of pulses (depleted pump, signal and idler) at the exit of the OPO. The observed dependencies of the output power versus the input pump power are in excellent agreement with these very simple simulations. The experimental data and the numerical model show the importance of the pump depletion, the pump reconstruction and the different behavior between the signal and idler pulses in the dynamics of nanosecond OPOs.

## 2 Numerical model

The parametric interactions between the pump, signal and idler fields inside the non-linear crystal of the OPOs are classically described by a set of coupled amplitude equa-

✉ Fax: +33-169/93-61-92, E-mail: cyril.drag@onera.fr

## Observation of cold state-selected cesium molecules formed by stimulated Raman photoassociation

Bruno Laburthe Tolra, Cyril Drag, and Pierre Pillet\*

*Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France*

(Received 13 October 2000; revised manuscript received 3 April 2001; published 9 November 2001)

We demonstrate the formation of cold ground-state  $\text{Cs}_2$  molecules (presumably in a single well-defined rovibrational level) by stimulated Raman photoassociation (PA) in a Cs vapor cell magneto-optical trap. Autler-Townes measurements allow us to precisely define the experimental conditions. The efficiency of the process is comparable to that of the formation of cold molecules obtained after spontaneous deexcitation of photoassociated molecules. Stimulated Raman PA should provide samples where the molecules are cold not only translationally, but are also in a selected rovibrational level.

DOI: 10.1103/PhysRevA.64.061401

PACS number(s): 32.80.Pj, 33.20.-t, 34.20.-b

To form a sample of cold ground-state molecules, all in a chosen well-defined rovibrational level will really constitute an exciting tool for molecular physics, and also for cold collisions or molecule optics and interferometry. To be able to explicitly detect these molecules is a key for the development of further experiments. Several methods to obtain cold molecules have recently been demonstrated. The first one was the formation of cold molecules via photoassociation (PA) of cold atoms [1]. Another technique consists in magnetic trapping of ground-state CaH molecules [2], cryogenically cooled by  $^3\text{He}$  buffer gas. Recently, electrostatic loading of  $\text{ND}_3$  molecules has been obtained after slowing of an adiabatically cooled beam of polar molecules by time-varying inhomogeneous electric fields [3]. The formation of cold molecules through PA is up to now the only method to reach the microkelvin range. In a PA process, two free colliding atoms resonantly absorb one photon to produce an electronically excited molecule in a well-defined rovibrational level. By exciting the  $1_u$  and  $0_g^-$  states correlated to the dissociation limit ( $6s+6p_{3/2}$ ), PA of cold Cs atoms leads, after spontaneous deexcitation of the photoassociated molecules, to the formation of translationally cold  $\text{Cs}_2$  molecules, in either the ground state or in the lowest triplet state, respectively [1]. Temperatures in the range of 20–200  $\mu\text{K}$  (identical to the initial atomic temperatures) and formation rates up to 0.2 molecules per second and per atom have been measured [4]. The molecule formation efficiency depends on both the PA efficiency and the branching ratio (generally weak) between bound-bound (formation of cold molecules) and bound-free (dissociation) transitions for the photoassociated excited molecules. Cesium presents a very efficient scheme because of the particular double-well shape of the photoassociated long-range states,  $0_g^-$  and  $1_u(6s+6p_{3/2})$ , which provides a Condon point at intermediate distances (15–25 a.u.) [1]. The formation of translationally cold molecules via PA has also been observed for rubidium [5], and potassium [6]. Production of cold  $\text{K}_2$  molecules has also been achieved via two-step PA through highly excited molecules [7].

The molecules formed via PA followed by spontaneous emission are indeed translationally cold, but they are not

internally cold. They are in several rovibrational levels, determined by the Franck-Condon factors. A way around this problem is to use stimulated Raman PA, where the emission on a given bound-bound transition is stimulated (see scheme of the relevant levels in Fig. 1), and which forms state-selected cold molecules [8,9]. Stimulated Raman PA has already been observed in a Rb condensate, where molecules are presumably formed, as indicated by the lineshape of the process only observed through atom losses [10]. Our experiment differs from this performed with a condensate by two main aspects. First, the atomic density in a condensate is three orders of magnitude larger than that of the Cs magneto-optical trap (MOT) sample used, which does not make our experiment a trivial extension of the results of reference [10]. The possibility to obtain an efficient formation of cold molecules via stimulated Raman PA with a low-density atomic sample is not at all obvious. Moreover, compared to the condensate experiment, the achievement of the stimulated Raman PA in a standard MOT opens a simple way for a large range of experiments with cold molecules, when the quantum coherence of the medium is not required. Second, we detect explicitly the molecules by photoionization and time-of-flight mass spectrometry. We report in this Rapid Commu-

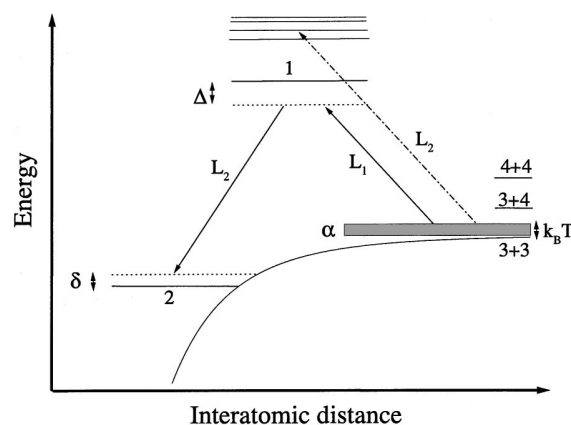


FIG. 1. Relevant energy levels of the stimulated Raman PA transition, from a continuum of states  $\alpha$  of the two colliding atoms to a final bound level (2) of the molecule.  $\Delta$  and  $\delta$  correspond to the detunings of lasers  $L_1$  and  $L_2$ , compared to the PA transition  $\alpha \rightarrow 1$  and to the stimulated Raman PA transition  $\alpha \rightarrow 2$ . The laser  $L_2$  can also produce one-photon PA.

\*Email address: pierre.pillet@lac.u-psud.fr

## Resonant Coupling in the Formation of Ultracold Ground State Molecules via Photoassociation

C. M. Dion, C. Drag, O. Dulieu, B. Laburthe Tolra, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet

*Laboratoire Aimé Cotton du CNRS, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay, France*

(Received 25 September 2000)

We demonstrate the existence of a new mechanism for the formation of ultracold molecules via photoassociation of cold cesium atoms. The experimental results, interpreted with numerical calculations, suggest that a resonant coupling between vibrational levels of the  $0_u^+$  ( $6s + 6p_{1/2}$ ) and ( $6s + 6p_{3/2}$ ) states enables formation of ultracold molecules in vibrational levels of the ground state well below the  $6s + 6s$  dissociation limit. Such a scheme should be observable with many other electronic states and atomic species.

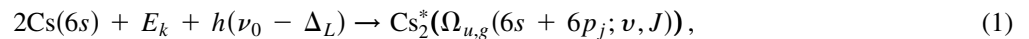
DOI: 10.1103/PhysRevLett.86.2253

PACS numbers: 33.80.Ps, 32.80.Pj, 33.20.-t, 34.20.-b

Efficient formation of long-lived cold molecules, via single-color photoassociation (PA) of a cold atom pair followed by spontaneous emission, has recently been observed for  $\text{Cs}_2$  [1]. The formation process relies upon particular double-well features in  $\text{Cs}_2$  excited potential curves, as was also observed for  $\text{Rb}_2$  [2]. A more elaborate

two-color PA scheme is required to achieve a comparable efficiency in  $\text{K}_2$  [3]. In the present paper, we propose for  $\text{Cs}_2$  the existence of a more general formation mechanism.

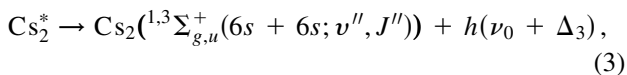
In the quoted experiments, the first step is a PA reaction between a pair of atoms of relative kinetic energy  $E_k = k_B T$  (at a temperature  $T \sim 10^{-4}$  K), which for cesium can be expressed as



where  $\nu_0$  is the frequency of the  $6s \rightarrow 6p_j$  resonance line ( $j = 1/2, 3/2$ ) and  $\Delta_L (>0)$  is the red detuning of the laser. Reaction (1) can be understood as a vertical transition from the continuum of the ground molecular state to a rovibrational level ( $\nu, J$ ) of the excited state  $\Omega_{u,g}$ . Because of the  $-C_3/R^3$  long-range behavior of this potential and the ultralow temperature of the atoms, the transition occurs mostly at a large interatomic distance  $R_L \sim (C_3/h\Delta_L)^{1/3}$ , corresponding to the outer turning point of the excited potential, where the vibrational wave function is mainly localized [see Fig. 1(a)]. In most cases, this short-lived photoassociated molecule decays back, by spontaneous emission of a photon of frequency  $\nu_0 - \Delta_2$ , into a pair of atoms:



The gain in relative kinetic energy [ $E_k' - E_k = h(\Delta_2 - \Delta_L) > 0$ ] generally allows both atoms to escape from the trap. The stabilization into a ground state molecule with a binding energy  $E_{v''} = h(\Delta_L + \Delta_3) - E_k$ ,



requires a favorable overlap between the vibrational wave functions of both the excited and ground molecular states. Because of the shorter range of the asymptotic  $-C_6/R^6$  ground state potential, only the uppermost levels of the ground state can be populated via reaction (3) [4,5]. Efficient mechanisms for formation of cold molecules in lower vibrational levels are offered by the double-well structure [Fig. 1(b)] of the  $\text{Cs}_2^* 0_g^-$  or  $1_u$  ( $6s + 6p_{3/2}$ ) long-range

potentials, where the vibrational wave function can display a high probability of presence both at large ( $R > 100$  a.u.) and intermediate ( $R \approx 15-25$  a.u.) internuclear distances [6,7].

Following recent work on channel coupling between the  $0_u^+(ns + np_j)$  states of the heavy alkali dimers [8,9], we discuss in this paper the efficiency of a new scheme taking advantage of this coupling. For small detunings  $\Delta_L$  below the  $6s + 6p_{1/2}$  limit, PA can proceed from the continuum of the  $X^1\Sigma_g^+$  ground state to a vibrational level of the  $0_u^+(6s + 6p_{1/2})$  state. Because of the coupling with the  $0_u^+(6s + 6p_{3/2})$  state, a resonance phenomenon can occur between the two vibrational series and is manifested, close to the  $6s + 6p_{1/2}$  dissociation limit, by a vibrational wave function showing a noticeable density probability at intermediate distances as well as at large distances [Fig. 1(c)]. Such a behavior favors spontaneous emission towards lower-energy bound levels of the  $X^1\Sigma_g^+$  state.

The experimental setup was described in detail in Refs. [1,6]. To summarize, a magneto-optical trap is loaded with about  $5 \times 10^7$  cesium atoms, at a density of  $n_{\text{at}} = 4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  and temperature of  $130 \pm 10 \mu\text{K}$ . PA is achieved by continuously illuminating the cold Cs atoms with the beam ( $\sim 200 \text{ W/cm}^2$ ) of a Ti:sapphire laser pumped by an argon-ion laser, slightly red-detuned from the  $6s(f=4) \rightarrow 6p_{1/2}(f'=4)$  atomic transition ( $\lambda = 894 \text{ nm}$ ). This method is now well established for long-range molecular PA spectroscopy [7,10].

Two detection methods are used to monitor the PA process. First, we measure the fluorescence yield, collected by a photodiode, from the trapped atoms. Variations in the



## Photoassociative Spectroscopy as a Self-Sufficient Tool for the Determination of the Cs Triplet Scattering Length

C. Drag,<sup>1</sup> B. Laburthe Tolra,<sup>1</sup> B. T'Jampens,<sup>1</sup> D. Comparat,<sup>1</sup> M. Allegrini,<sup>1,2</sup> A. Crubellier,<sup>1</sup> and P. Pillet<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

<sup>2</sup>INFM, Unità di Pisa-Università, Piazza Torricelli, 2 56122 Pisa, Italy  
and Dipartimento di Fisica MTF, Università di Messina, 98166 Messina, Italy

(Received 23 December 1999)

In photoassociation spectroscopy, the line intensities of a given vibrational progression exhibit zero-signal modulation reflecting the node structure of the  $s$ -wave ground state wave function of two free colliding atoms. This leads to the determination of the scattering length. We performed photoassociation of cold Cs atoms polarized in the Zeeman sublevel  $f = 4$ ,  $m_f = 4$ . We analyzed the intensities of the lines associated with the  $\text{Cs}_2 0_g^-$  state dissociating to the  $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$  asymptote. This yields a value of the Cs triplet state scattering length,  $a_T = -530a_0$ , while consistency requirements impose a value of the multipole ground state molecular coefficient,  $C_6 = 6510$  a.u.

PACS numbers: 32.80.Pj, 33.20.-t, 34.20.-b

Collisional properties of ultracold atoms are of crucial importance for Bose-Einstein condensation. This phenomenon has presently been demonstrated for rubidium, sodium, lithium, and recently hydrogen. The scattering length is a key parameter for the production and the stability of a condensate; in particular, in a magnetic trap, a negative value of the scattering length strongly limits the number of atoms inside the condensate [1]. The value of the scattering length is also critical in the interpretation of the collisional frequency shift. Regarding the present development of high-precision atomic clocks using cold atoms, the knowledge of scattering lengths is therefore very important in metrology. The scattering length of cesium has thus been the object of a substantial research effort [2–6].

Molecular photoassociative (PA) spectroscopy of alkali dimers allows an accurate determination of the long-range part of molecular potential curves correlated to the  $6s + 6p$  asymptotes, through the precise measurement of the ro-vibrational energy levels of the different molecular states [7]. In a previous article [8], we reported the PA spectroscopy of the  $\text{Cs}_2 0_g^-$  long-range molecular state dissociating to the  $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$  asymptote. Photoassociative excitation of the  $\text{Cs}_2 0_g^-$  long-range molecular state produces, by spontaneous decay, translationally cold  $\text{Cs}_2$  molecules in the lowest triplet ground state  $a^3\Sigma_u^+$  [9]. The spectroscopic data of the  $0_g^-$  series have been analyzed in terms of Rydberg-Klein-Rees (RKR) and near dissociation expansion (NDE) procedures [8]. In that paper, we already noticed a marked modulation in the intensities of the spectral lines that we attributed to the PA transition between the initial state consisting in two free cold atoms and the final state which is a ro-vibrational level of the  $0_g^-$  state. As discussed in several references [7,10–12], the observed modulation gives access to knowledge of the nodes of the initial wave function of the two colliding atoms and can then lead to the determination of the scattering length of the initial channel. There exists

indeed a one-to-one relation between the position of the nodes and the value of the scattering length [13], which involves only the asymptotic part of the ground state potential. It was, however, difficult to fully analyze the data published in Ref. [8] because they correspond to a degenerate dissociation limit and thus to several, *a priori* distinct, scattering lengths.

In order to determine the Cs triplet scattering length, we have now performed a new experiment consisting in molecular PA of cold atoms polarized in the ground state Zeeman sublevel,  $f = 4$ ,  $m_f = 4$ . The colliding atoms are in a two-atom state with a total angular momentum  $F_i = 8$ , with projection on the quantization axis  $M_F = 8$ ; this state is correlated only with the molecular Cs triplet ground state, leading to a true one-channel problem. An accurate value of the  $C_6$  parameter is needed for the determination of the scattering length, especially in the case of cesium where the absolute value of the scattering length is known to be large, so that it is very difficult to fix its sign [9]. In this Letter, by carefully analyzing the intensity minima of the PA spectrum, we determine not only the triplet scattering length  $a_T$  but also the value of the ground state molecular  $C_6$  parameter. As experimental determination of both parameters is in general difficult, the method described here can be very helpful to define the criteria for Bose-Einstein condensation experiments, for cesium and other elements as well.

The essential idea of our analysis is depicted in Fig. 1, which shows schematically the potential curves for the  $0_g^-$  state and for two ground state atoms. As already mentioned, the  $0_g^-$  potential is known from previous measurements of the ro-vibrational structure. Figure 1 also shows the wave function for a particular  $\nu$  value, with its outer lobe at  $R_M$ . If the ground state wave function has an antinode at  $R_M$ , there is a maximum in the PA signal, while if there is a node at  $R_M$ , the PA signal vanishes. Whether there is a node or antinode at  $R_M$  depends on the scattering length but also on the asymptotic part of the potential

# Experimental Versus Theoretical Rates for Photoassociation and for Formation of Ultracold Molecules

Cyril Drag, Bruno Laburthe Tolra, Olivier Dulieu, Daniel Comparat, Mihaela Vatasescu, Salah Boussen, Samuel Guibal, Anne Crubellier, and Pierre Pillet

**Abstract**—We report on the spectra of the long-range attractive molecular states of the  $\text{Cs}_2$  dimer below the dissociation limits  $6s + 6p_{1/2}$  and  $6s + 6p_{3/2}$  which are accessible by molecular photoassociation of cold Cs atoms. For the states  $0_u^+$  and  $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ , we have performed trap-loss measurements, which are in good agreement with the theoretical calculations, performed in a perturbative approach. For the  $0_g^-$  and  $1_u(6s + 6p_{3/2})$  states, we observe, after spontaneous decay of the electronically excited molecules, the formation of translationally cold molecules. A rate of formation of cold molecules of the order of  $\sim 10^6$  molecules per second is obtained in the case of the state  $0_g^-$ .

**Index Terms**—Cold collisions, cold molecules, laser cooling, long-range interaction, molecular photoassociation.

## I. INTRODUCTION

**M**OLECULAR photoassociation (PA) of cold atoms is a promising way for obtaining gas samples of cold molecules [1]. The formation of cold molecules is the result of the absorption of one photon by two colliding cold atoms to create an excited cold molecule, which spontaneously radiates toward the molecular states correlated with ground-state atoms. In such experiments, it is difficult to estimate the actual efficiency of the different processes. Cold collisions are very sensitive to the experimental conditions, and the resonance enhanced multi-photon ionization (REMPI) process used for the detection of cold molecules in states correlated with ground-state atoms is not well known. We have performed precise measurements of the photoassociation rates in well-controlled experimental conditions. We compare them to the rates calculated in a perturbative approach. The number of cold molecules is deduced from the experimental PA rates by using the calculated branching ratio of spontaneous emission toward the molecular states correlating with ground-state atoms. We compare the number obtained with the number of detected molecular ions.

### A. Photoassociation Process

The reason for interest in the molecular PA process with cold atoms has been pointed out in the early times of laser cooling developments [2]. During a PA transition, a pair of ground-

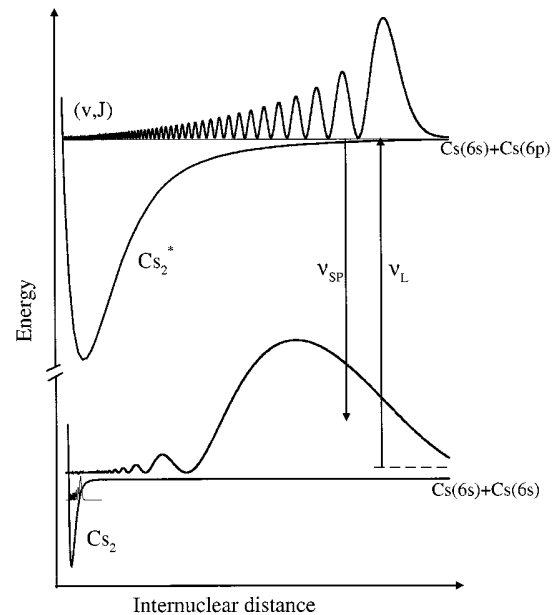


Fig. 1. Schematic potential curves and radial wavefunctions of the interatomic motion involved in the PA process ( $\nu_{PA}$ ) between two cold alkali atoms. The radial wave-functions of the two free colliding atoms and of the final excited ro-vibrational level are drawn in the figure. The spontaneous decay ( $\nu_{SP}$ ) is mostly expected to occur at large distance. A radial wave-function of a bound level in the lower long-lived state is also shown.

state atoms absorbs a photon detuned to the red from an atomic resonance to populate an excited attractive electronic state of the corresponding dimer. When cold atoms are involved, this process produces an electronically excited molecule in a well-defined ro-vibrational level. The PA process has many implications in molecular spectroscopy [3]. The resolution of the PA spectroscopy is limited by the width of the statistical distribution of the relative colliding kinetic energy, which is of the order of  $k_B T$  ( $k_B$  is the Boltzmann constant and  $T$  the temperature of the atomic sample), that is about 2 MHz at  $T \approx 100 \mu\text{K}$ . Taking into account the natural width of the resonance line and the spectral width of the PA laser, a resolution better than 10 MHz can be reached. In the dilute medium of cold atoms, PA is efficient mainly at a long-range interatomic distance  $R$ , since the probability to find two atoms at a distance  $R$  varies as  $R^2$ ; PA of cold atoms is therefore particularly well adapted to studying long-range molecular states. For homonuclear alkali dimers, the molecular potential curves correlated to the first excited dissociation limit  $s + p$  present an asymptotic behavior in

Manuscript received March 21, 2000; revised July 17, 2000.

The authors are with the Laboratoire Aimé Cotton, Université Paris-Sud., CNRS II, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France (e-mail: pierre.pillet@lac.u-psud.fr).

Publisher Item Identifier S 0018-9197(00)10558-5.

# Formation of cold Cs<sub>2</sub> ground state molecules through photoassociation in the 1<sub>u</sub> pure long-range state

D. Comparat, C. Drag, B. Laburthe Tolra, A. Fioretti, P. Pillet<sup>a</sup>, A. Crubellier, O. Dulieu, and F. Masnou-Seeuws

Laboratoire Aimé Cotton<sup>b</sup>, CNRS II, bâtiment 505, 91405 Orsay, France

Received 19 July 1999

**Abstract.** We report on the formation of translationally cold Cs<sub>2</sub> ground state molecules through photoassociation in the 1<sub>u</sub> attractive molecular state below the  $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$  dissociation limit. The cold molecules are obtained after spontaneous decay of photoassociated molecules in a MOT and in a dark SPOT. We also used polarized atoms, in the  $f = 3$ ,  $m_f = +3$  Zeeman ground state. Purely asymptotic and adiabatic calculations including hyperfine interaction and rotation are in excellent agreement with observed structures. As expected, the 1<sub>u</sub> state is actually a pure long-range state, consisting of paired atoms, uniquely linked by the first terms of the multipole expansion of the electrostatic interaction. A temperature of  $20_{-5}^{+15}$  μK has been measured for the molecular cloud.

**PACS.** 32.80.Pj Optical cooling of atoms; trapping – 33.20.-t Molecular spectra – 34.20.-b Interatomic and intermolecular potentials and forces, potential energy surfaces for collisions

## 1 Introduction

The experimental techniques of laser cooling of atoms in the mK–μK range and below, as well as the trapping and the manipulation of neutral atomic samples, based on radiative pressure, are now well established. Their extension to molecules is however very difficult because of the lack of two-level optical pumping schemes for population recycling [1]. Molecules have largely been unaffected by the impressive developments in laser cooling over the past decade. Exceptions are perhaps the deflection of a molecular beam [2] or the demonstration by Djeu and Whitney [3] of laser cooling by spontaneous anti-Stokes scattering, introduced long ago by Kastler as “luminorefrigeration” [4]. The latter method presents, however, poor efficiency and poor control. Laser manipulation of molecules has reached more promising development in molecular optics and interferometry [5]. Coherent population transfer between molecular states, known as STIRAP (stimulated Raman adiabatic passage) [6], offers potential devices for molecular mirrors or beam-splitters [7], which have already been developed for atoms [8–11].

An interesting specific scheme for the formation of cold molecules is to start from cold and dense atomic samples and to form cold molecules by molecular photoassociation (PA) of two cold atoms [12]. PA has been demonstrated for alkali atoms from Li to Cs [13–17], and more recently for the hydrogen atom [18]. In this process, two

free cold atoms resonantly absorb one photon and produce an excited molecule in a well-defined ro-vibrational state. The excited photoassociated molecules are translationally cold (neglecting the recoil energy, they are at the same temperature as the atoms). De-excitation of the photoassociated molecules appears thus as an obvious way to form cold ground state molecules. However, photoassociation generally corresponds to a long-range excitation, so that the bound-bound spontaneous decay probability is very small [19]. Spontaneous emission leads back mostly to dissociation of the transient cold molecules into two free atoms.

In a previous letter [17], we have reported on both the first observation of molecular PA of cold cesium atoms in a vapor cell magneto-optical trap (MOT) and the first observation of translationally cold Cs<sub>2</sub> molecules in their triplet ground state, through PA in the  $0_g^-$  long-range state. The efficiency of the mechanism for the formation of cold molecules comes from the existence of a Condon point at intermediate distance, corresponding to a long-range molecular well. Two different typical PA processes, either without or with formation of cold molecules are schematically shown in Figures 1 and 2, respectively. In both cases photoassociation happens at long-range distances. If spontaneous emission occurs at a short enough interatomic distance, cold ground state molecules can be formed, while spontaneous emission at a long-range distance predominantly leads to dissociation of the excited molecules. In the case of Figure 1, the vibration of the excited molecules always keeps the two atoms at a too large interatomic distance, leading generally to a negligible cold-molecule formation rate. In the case of Figure 2,

<sup>a</sup> e-mail: pierre.pillet@lac.u-psud.fr

<sup>b</sup> Laboratoire Aimé Cotton is associated with University of Paris-Sud.

## Multichannel tunneling in the $\text{Cs}_2 0_g^-$ photoassociation spectrum

Mihaela Vatasescu,<sup>1,2</sup> Olivier Dulieu,<sup>1</sup> Claude Amiot,<sup>1</sup> Daniel Comparat,<sup>1</sup> Cyril Drag,<sup>1</sup> Viatcheslav Kokoouline,<sup>1,3</sup>

Françoise Masnou-Seeuws,<sup>1</sup> and Pierre Pillet<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay, France

<sup>2</sup>Institute for Space Sciences, P.O. Box MG-36, R76900 Magurele-Bucarest, Romania

<sup>3</sup>The Institute of Physics, Saint-Petersburg State University, Saint-Petersburg 198904, Russia

(Received 6 October 1999; published 3 March 2000)

Two features with large rotational structure, observed at detunings  $\delta_1 = -2.14 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\delta_2 = -6.15 \text{ cm}^{-1}$  in the cesium photoassociation spectrum, are interpreted as due to the combined effect of tunneling through the barrier of the double-well  $0_g^-(6s+6p_{3/2})$  potential, and channel mixing in the inner-well region. A precise value of the height of the barrier is given. The levels affected by these effects are expected to decay into low vibrational levels of the lowest triplet state, thus producing ultracold molecules.

PACS number(s): 34.20.-b, 32.80.Pj, 33.20.-t, 33.80.Ps

### I. INTRODUCTION

The formation of ultracold molecules in their lowest electronic triplet state  $a^3\Sigma_u^+$  or in their ground electronic state  $X^1\Sigma_g^+$  has been observed for the first time [1] through photoassociation of two free cold cesium atoms into  $0_g^-(6s+6p_{3/2})$  or  $1_u(6s+6p_{3/2})$   $\text{Cs}_2$  excited electronic states (hereafter referred to as  $0_g^-$  and  $1_u$ ). For most alkali dimers, the radiative decay of the excited long-range molecules formed by photoassociation yields back a pair of atoms in their ground state. However, the inner classical turning points  $R_i$  for the vibrational motion in these  $\text{Cs}_2 0_g^-$  and  $1_u$  states are located in the ‘‘intermediate long range’’ of internuclear distances, i.e.,  $R_i \approx (16-30)a_0$  (see Fig. 1 for  $0_g^-$ ). Due to the slow variation ( $\approx R^{-3}$ ) of the potential curve in this range, the motion is gradually stopped, so that spontaneous emission towards the  $X^1\Sigma_g^+$  or  $a^3\Sigma_u^+$  states can take place during a long time interval at distances  $R \approx R_i$ . The range of  $R_i$  values coincides with the location of the outer turning point for the uppermost vibrational levels of the  $X^1\Sigma_g^+$  or  $a^3\Sigma_u^+$  potential curve (with  $R^{-6}$  asymptotic behavior). Franck-Condon transitions can therefore efficiently transfer population towards these bound levels, allowing the formation of long-lived molecules. These molecules, whereas translationally ultracold, are expected to be created in high lying vibrational levels.

The double-well structure of the  $\text{Cs}_2(0_g^-)$  potential curve is illustrated in Fig. 1, displaying two wells separated by a potential barrier at distance  $R_b \approx 15a_0$ . The vibrational levels of the external well (hereafter referred to as the ‘‘regular’’ series) have been assigned from  $v_{ext}=0$  up to  $v_{ext}=132$  in the photoassociation spectrum [2], allowing the determination of the relevant part of the potential curve through a combined Rydberg-Klein-Rees (RKR) and ‘‘near dissociation expansion’’ (NDE) analysis. A good agreement has been found with *ab initio* calculations [3,4]. However, such analysis provides no information on the height of the barrier nor on the inner well.

In the present work, we interpret the presence in the photoassociation spectrum of two structures not involved in the regular series, as due to both *tunneling* of vibrational wave

functions through the barrier, and *electronic channel mixing* due to radial coupling in the region of the inner well. An estimate for the height of the barrier is given, while the emphasis is put on the necessity to introduce short distance channel mixing to reproduce the observations. Finally we discuss the efficiency of ultracold molecule formation after spontaneous emission from the levels affected by the tunneling.

### II. EXPERIMENTAL SPECTRA

The experimental procedure has already been described in Refs. [1,2]. Let us recall briefly that the formed ultracold molecules are ionized into  $\text{Cs}_2^+$  ions using a pulsed resonant two-photon absorption. We present in Fig. 2 details of the  $\text{Cs}_2^+$  ion spectrum as a function of the detuning  $\delta$  of the photoassociation laser relative to the  $6s(F=4)+6p_{3/2}(F'=5)$  dissociation limit. Two previously unassigned structures  $G_1, G_2$ , that are not part of the ‘‘regular’’ series, are

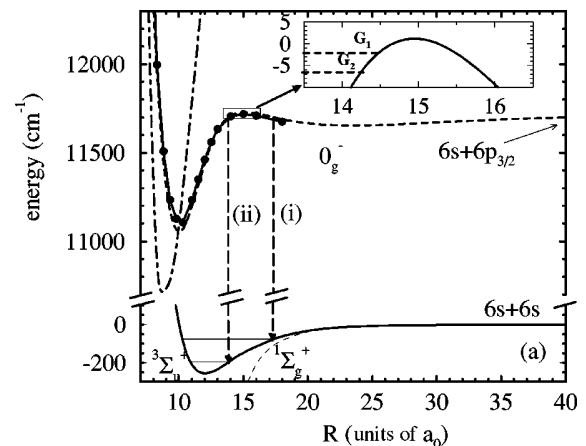


FIG. 1.  $\text{Cs}_2$  molecular potential curves used in the present work. (a)  $V_{6p}(R)$  [dashed line, not distinguishable from  $V'_{6p}(R)$ ],  $V_{6p}^{dia}(R)$  (solid line with circles), and  $V_{5d}^{dia}(R)$  (dot-dashed line). Curves for the  $X^1\Sigma_g^+$  and  $a^3\Sigma_u^+$  triplet states are also displayed. The vertical lines (i) and (ii) schematize the spontaneous emission from the excited state when the vibrational motion takes place within the external or the internal well, respectively. (b)  $V'_{6p}(R)$  in the region of the hump, with experimental binding energies of  $G_1$  and  $G_2$ .

## Long-Range Forces between Cold Atoms

A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, T. F. Gallagher,\* and P. Pillet

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

(Received 28 July 1998)

Long-range interactions can substantially modify collision or interaction processes among cold atoms. We are able to monitor their effects on two different systems: Cs atoms which undergo photoassociation and highly excited Cs Rydberg atoms. Although the length and the time scales of the interactions are quite different, their effects can be described with the same resonant dipole picture. [S0031-9007(99)08564-6]

PACS numbers: 34.50.Rk, 32.80.Pj, 34.60.+z

Collisions between two cold atoms are extremely sensitive to the long-range part of interatomic potentials. For example, recent experiments in cold optical collisions observed in real time [1,2] have shown the effects of the resonant dipole-dipole interaction. In these experiments, respectively, with rubidium and xenon trapped atoms, photoexcitation of pairs of atoms at relatively short internuclear distance [ $R \sim (10-400)a_0$ ] gives rise, respectively, to trap loss [1] and associative ionization [2]. As such processes depend on the flux of colliding particles arriving at short distance, they can be enhanced (shielded) by exciting at large distance [ $R_{\text{exc}} \sim (1000-3000)a_0$ ] the atomic pairs to an attractive (repulsive) branch of the excited molecular potential curve.

The dynamical effects of long-range forces should be ubiquitous in experiments with cold atoms. Here we report two very different manifestations of essentially similar resonant dipole-dipole forces, in which the modified atomic dynamics at long range clearly affects the outcome of the reactions.

The first effect is the photoassociation (PA) of cold Cs atoms [3] into relatively high rotational states of the  $\text{Cs}_2$  excited molecule. In alkali PA spectroscopy [4], two free colliding atoms resonantly absorb one photon to form an excited dimer in a rovibrational state. The rotational number  $J$  is a direct signature of the partial waves involved in the collisional process. In our experiment, by exciting at long range atom pairs to an attractive excited state, we can increase the number of partial waves participating in the collision and observe PA into higher rotational levels.

The second effect is the distortion in the resonances of dipole-dipole energy transfer between cold Cs Rydberg atoms [5,6]. In this case pairs of atoms, separated by roughly  $2 \times 10^4 a_0$ , are moved slightly either closer together or farther apart by the dipole-dipole force over several microseconds. The resulting change in the dipole-dipole interaction strength distorts the resonances.

Although the systems and magnitudes of the involved quantities are very different, the dynamical effects are comparable and are due to the same resonant dipole-dipole interaction with the  $R^{-3}$  dependence.

The paper is organized as follows. The essential idea of the long-range forces is developed for the PA experiment,

followed by a description of the experiment. Then we describe the cold Rydberg atom system and the effects of the resonant dipole force in this case.

Long-range forces in the PA of Cs can be understood with the help of the level diagram in Fig. 1. At long range the ground-state potential of  $\text{Cs}(6s_{1/2}) + \text{Cs}(6s_{1/2})$  varies as  $-C_6/R^6$  (with  $C_6 = 6331$  a.u. from the asymptotic calculation in Ref. [7]) and is therefore essentially flat. On the contrary, the curves dissociating to  $\text{Cs}(6s_{1/2}) + \text{Cs}(6p_{3/2})$  have a repulsive/attractive behavior given by  $C_3/R^3$ . In a collision, the interatomic potential is modified by a centrifugal term of the form  $\hbar^2 l(l+1)/2m_r R^2$  ( $m_r$  is reduced mass of the system and  $l$  is relative angular momentum), which is enough to create effective centrifugal barriers in the ground state, but not in the excited state, in the range of energies explored.

In our magneto-optical trap (MOT), the trap laser is red-detuned a few MHz from the atomic transition and excites, at  $R_{\text{exc}} \sim 1500a_0$ , pairs of ground-state atoms to an attractive state of the excited transient quasimolecule (see Fig. 1). The pair of atoms experiences a force  $F = -3C_3/R^4$  ( $C_3 \approx 10$  a.u. is the square of the atomic dipole) which accelerates them toward each other until spontaneous radiative decay occurs, in about 30 ns. Since this process can be repeated several times before the atoms are out of resonance with the trap laser (*population recycling*),

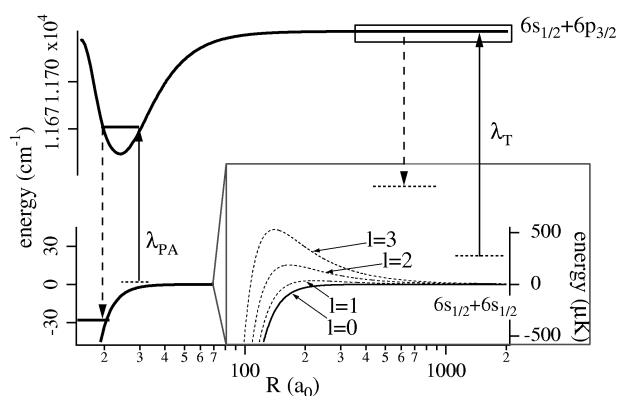


FIG. 1. Schematics of long-range excitation processes and of the short-range photoassociation one. The energy scale in the inset is magnified by a factor of  $10^5$ .

# Photoassociative spectroscopy of the $\text{Cs}_2 0_g^-$ long-range state

 A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, C. Amiot, O. Dulieu<sup>a</sup>, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet

 Laboratoire Aimé Cotton<sup>b</sup>, Université Paris-Sud, Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

Received: 20 May 1998 / Revised: 1st August 1998 / Accepted: 5 November 1998

**Abstract.** The photoassociative spectroscopy of the  $\text{Cs}_2 0_g^-$  long-range molecular state dissociating into the  $6s \ ^2S_{1/2} + 6p \ ^2P_{3/2}$  asymptote is performed, using cold cesium atoms in a vapor-cell magneto-optical trap (MOT). Vibrational levels from  $v = 0$  to  $v = 132$  are identified, and their rotational structure is well resolved up  $J = 8$  for levels below  $v = 74$ . These data are analyzed in terms of the Rydberg-Klein-Rees (RKR) procedure, and correspond to 99.6% of an effective potential curve with a minimum at  $12.36 \pm 0.05 \text{ \AA}$  and a  $77.94 \pm 0.01 \text{ cm}^{-1}$  depth. Both *ab initio* calculations and simple model estimations predict a double-well structure for this potential curve, which cannot be reproduced presently by the RKR approach but which is confirmed by the presence of giant structures in the spectrum. The  $1_u(6s \ ^2S_{1/2} + 6p \ ^2P_{3/2})$  long-range state is also observed for the first time in  $\text{Cs}_2$ .

**PACS.** 32.80.Pj Optical cooling of atoms; trapping – 33.20.-t Molecular spectra – 34.20.-b Interatomic and intermolecular potentials and forces, potential energy surfaces for collisions

## 1 Introduction

Determination of the long-range interactions between two neutral atoms have long been the object of a substantial effort [1]. During the past decade, developments in laser cooling and trapping of atoms has opened the way to photoassociative spectroscopy of alkali dimers [2], yielding accurate determinations for the long range part of molecular potential curves, in particular those correlated with the ground  $s + s$  or the first excited  $s + p$  asymptotes. The knowledge of these data is crucial in the interpretation of many new physical phenomena associated with cold atom dynamics, as for instance the prediction of the stability of Bose-Einstein condensates [3–5] which depends upon the ground state scattering lengths.

Molecular photoassociation (PA) of cold atoms has been demonstrated for all alkali atoms [6, 7], but only very recently for the cesium atom [8]. Due to their very low relative kinetic energy ( $k_B T \leq 1 \text{ mK} \simeq 21 \text{ MHz}$ ), two free cold atoms can absorb a photon with a resonant wavelength, to create an excited molecule in a well-defined rovibrational state. As the Franck-Condon principle favors the excitation of vibrational levels close to the dissociation limit, the PA of cold atoms supplies a new high resolution method complementary to the traditional bound-bound laser spectroscopy, which is in most cases devoted to lower levels. The combination of both methods can lead to the complete description of a potential curve, and to the deter-

mination of dissociation energies [9] or atomic radiative lifetimes [10–12] with an extremely high accuracy.

In a previous letter [8] we have reported on the first observation of molecular PA of cold cesium atoms in a vapor-cell magneto-optical trap. In this first experiment we have observed 63 lines ranging  $10 \text{ cm}^{-1}$  below the  $6s \ ^2S_{1/2} + 6p \ ^2P_{3/2}$  dissociation limit. Four accessible Hund's case (c) long-range attractive potential curves ( $1_g$ ,  $0_u^+$ ,  $0_g^-$  and  $1_u$ ) are converging towards this limit, and these lines have been attributed to rovibrational levels of the  $0_g^-$  state. The originality of the experiment was in the detection of  $\text{Cs}_2^+$  molecular ions by photoionization of  $\text{Cs}_2$  triplet ground state molecules, produced by spontaneous decay of the excited molecular state formed by photoassociation. Such molecules are indeed observed during their fall outside the atomic trap, providing the first evidence for the production of translationally cold molecules. The ballistic expansion of the molecular cloud has allowed us to determine a temperature of roughly  $300 \text{ \mu K}$  for the molecular sample, close to the estimated temperature of the initial atomic cloud ( $\sim 200 \text{ \mu K}$ ). The formation of cold molecules in a photoassociative scheme (Fig. 1) is linked to the particular shape of the  $0_g^-$  potential curve, which presents a Condon point at intermediate internuclear distances due to its double-well structure. This allows an efficient stabilization of cold molecules through spontaneous emission towards the lowest  $^3\Sigma_u^+$  electronic state.

In this article, we report on the photoassociative spectroscopy of the  $0_g^-$  long-range state over a  $80 \text{ cm}^{-1}$  energy range below the  $6s \ ^2S_{1/2} + 6p \ ^2P_{3/2}$  dissociation limit. This involves the measurement of the energies of

---

<sup>a</sup> e-mail: dulieu@perceval.lac.u-psud.fr

<sup>b</sup> CNRS II

# Photoassociative Spectroscopy and Formation of Cold Molecules in Cold Cesium Vapor: Trap–Loss Spectrum versus Ion Spectrum

D. Comparat, C. Drag, A. Fioretti, O. Dulieu, and P. Pillet

Laboratoire Aimé Cotton,<sup>1</sup> CNRS II, Bât. 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

Received August 6, 1998; in revised form October 10, 1998

We report on the experimental spectra of all the optically accessible long-range attractive molecular states of the Cs<sub>2</sub> dimer below the  $6s^2S_{1/2} + 6p^2P_{3/2}$  dissociation limit by molecular photoassociation of cold Cs atoms. The spectra are obtained by the usual trap–loss method as well as by pulsed–laser photoionization of Cs<sub>2</sub> molecules into Cs<sub>2</sub><sup>+</sup> ions. The two spectra present markedly different features. While the  $1_g$ ,  $0_u^+$ , and  $0_g^-$  vibrational progressions are present in the trap–loss spectrum, the Cs<sub>2</sub><sup>+</sup> ion spectrum presents only the  $0_g^-$  and  $1_u$  vibrational progressions. Those states ( $0_g^-$  and  $1_u$ ) lead to the formation of the translationally cold Cs<sub>2</sub> ground state molecules at temperatures in the 100 μK range, to our knowledge the lowest molecular temperature reported up until now. The  $C_3$  asymptotic coefficients for the  $0_u^+$  and  $1_g$  states are determined through a fit of the experimental energy levels. © 1999 Academic Press

**Key Words:** spectroscopy of dimer molecules; high-resolution laser spectroscopy; long-range molecules; collisions of cold atoms; cold molecules

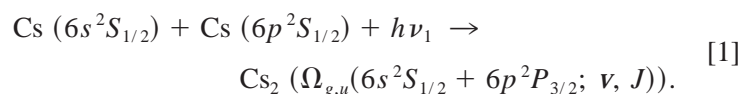
## I. INTRODUCTION

Laser cooling of atoms in the mK–μK range and below, as well as trapping and manipulating neutral atomic samples, are now well-established experimental techniques that have opened the way to many exciting research lines, including metrology, atom interferometry, optical crystals, and the realization of dilute quantum-degenerate Bose gases. In contrast, direct laser cooling of molecules is very difficult because of the lack of closed two-level optical transitions for recycling population (1), and molecules have almost been absent in the impressive experimental developments in laser cooling. One can nevertheless cite the deflection of a molecular beam (2) or the only successful demonstration for laser cooling of molecules by Djeu and Whitney (3) by spontaneous anti-Stokes scattering, already introduced by Kastler as luminorefrigeration (4). This last method presents poor efficiency and control. Laser manipulation of molecules has known a promising development in molecule optics and interferometry (5). Coherent population transfer between molecular states, the so-called STIRAP (STIMulated Raman Adiabatic Passage) (6), offers potential devices for molecule mirror or beamsplitter (7), as already demonstrated for atoms (8–11).

A possible alternative scheme to laser cooling for molecules is to start from cold and dense atomic samples to form cold molecules by molecular photoassociation (PA) of two cold atoms (12). PA has been demonstrated for all alkali atoms (13–17). In such a process, a pair of two free cold atoms absorb one photon with a resonant wavelength to produce an excited molecule in a well-defined rovibrational state. The excited

photoassociated molecule is translationally cold. The formation of translationally cold ground state molecules after desexcitation of photoassociated molecules appears as a possible way. Unfortunately, the bound–bound spontaneous decay process is generally very small (18) and the spontaneous emission leads back to the dissociation of the transient cold molecules into two atoms. More complex schemes have also been proposed (19, 20), involving several Franck–Condon pumping schemes.

In previous papers (17, 21), we have reported the first observation of molecular PA of cold cesium atoms in a vapor cell magneto–optical trap (MOT) and the first observation of translationally cold Cs<sub>2</sub> molecules in their ground state, analyzed during their ballistic fall out of the atomic trap. The photoassociative reaction for cesium reads:



In reaction [1], four attractive long-range Hund's case (c) states can be populated,  $1_g$ ,  $0_u^+$ ,  $0_g^-$ , and  $1_u$  (transition to the attractive  $2_u$  state is electric dipole forbidden). A significant fraction of the excited  $1_u$  and  $0_g^-$  long-range molecular states radiatively decay into bound vibrational levels of the  $X^1\Sigma_g^+$  ground state and the lowest triplet state  $a^3\Sigma_u^+$ . One of the originalities of the experiment was in the sensitive detection of Cs<sub>2</sub><sup>+</sup> molecular ions by photoionization of Cs<sub>2</sub> ground state molecules, which allowed us to detect the formation of almost every single cold molecule.

In this paper, we report complementary photoassociation experiments performed on cold cesium atoms with the trap–

<sup>1</sup> Laboratoire Aimé Cotton is associated with Université Paris Sud.